

Fakultät für Mathematik und Naturwissenschaften

Bachelorarbeit

Messung des thermooptischen Koeffizienten von Lithiumniobat

im sichtbaren und infraroten Spektralbereich

eingereicht: Dezember 2014

verteidigt: 26. Januar 2015

überarbeitet: Februar 2015

vorgelegt von:

Levin Sebastian Streit

Mail: levin.streit@web.de

Gutachter:

Dr. Frank Kühnemann

Dr. Sviatoslav Shokhovets

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	iii
1. Einleitung und Motivation	1
2. Grundlagen	1
2.1 Lithiumniobat	1
2.2 den Brechungsindex beeinflussende Effekte	5
2.2.1 thermooptischer Effekt	5
2.2.2 elektrooptischer Effekt	8
2.2.3 elastooptischer Effekt.	10
3. experimentelle Methode	11
3.1 Messprinzip	11
3.2 Herleitung der Messgleichung	12
3.3 Laserlichtquelle	14
3.4 Messaufbau	15
3.5 Messmodi und Auswertemethoden	21
3.5.1 Gleichgewichtsmodus	22
3.5.2 Rampenmodus.	24
4. Proben	27
5. Messergebnisse und Diskussion	30
5.1 Vergleich der Messmodi	30
5.2 Ausschluss von Querempfindlichkeiten	32
5.2.1 photorefraktiver Effekt	32
5.2.2 pyroelektrischer Effekt	33
5.2.3 mechanische Spannung	33
5.2.4 räumlicher Temperaturgradient.	36
5.3 Drift	38
5.4 Amplitudenschwankung	48

5.5	Messgenauigkeit	49
5.6	thermooptischer Koeffizient von kongruentem Lithiumniobat	51
5.7	Vergleich mit dotiertem sowie stöchiometrischem Lithiumniobat	59
6.	Fazit und Ausblick	63
	Abkürzungsverzeichnis	I
	Symbolverzeichnis	II
	Abbildungsverzeichnis	IV
	Literaturverzeichnis	V
	Dank	XI
	Eigenständigkeitserklärung	XI
	Anhang	XII
	thermischer Ausdehnungskoeffizient von <i>CLN</i>	XII
	Polynomfits durch die <i>Peaknummern über Peakpositionen</i> -Graphen	XII

Zusammenfassung

Für die wellenlängen-, temperatur- und polarisationsabhängige Vermessung des thermo-optischen Koeffizienten dn/dT eines optischen Kristalls wird in dieser Arbeit eine interferometrische Messmethode mit zwei konzeptionell unterschiedlichen Messmodi vorgestellt. Wichtige Einflussgrößen für die Vermessung von Lithiumniobat werden diskutiert und weitestgehend ausgeschlossen. Zur Auswertung der Messergebnisse werden zwei verschiedene Methoden eingeführt.

An kongruentem Lithiumniobat wird der thermo-optische Koeffizient mithilfe einer im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich durchstimmbaren Laserlichtquelle im Temperaturbereich von $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ bis $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ bei Wellenlängen zwischen 460 nm und 600 nm sowie 900 nm und 1130 nm in ordentlicher und außerordentlicher Polarisation vermessen. Die Ergebnisse werden in Form einer Schott-Gleichung angegeben. Für kongruent dotiertes sowie stöchiometrisches Lithiumniobat werden Vergleichsmessungen durchgeführt und diskutiert.

Abstract

An interferometric method of measurement for wavelength-, temperature- and polarisation-dependent determination of the thermo-optic coefficient dn/dT (TOC) of optical crystals with two different modes of measurement is presented in this work. Important influencing quantities in the case of lithium niobate are discussed and ruled out for the most part. Two different methods of evaluation are introduced.

Measurements of the thermo-optic coefficient are conducted on congruently melting lithium niobate in the temperature range from $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ to $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ at wavelengths between 460 nm and 600 nm as well as 900 nm and 1130 nm for both ordinary and extraordinary polarisation using a tunable laser. A Schott-equation of the results is provided. Comparative measurements on doped congruent as well as stoichiometric lithium niobate are conducted and discussed.

1 Einleitung und Motivation

Lithiumniobat ist ein nichtlinear optischer Kristall, der unter anderem als frequenzverdoppelndes Element oder als frequenzveränderndes Element eines optisch parametrischen Oszillators breite Anwendung in Wissenschaft und Technik hat. Für die Konstruktion solcher Systeme ist eine genaue Kenntnis der Materialparameter nötig. Dazu gehört der thermooptische Koeffizient dn/dT , der die durch eine kleine Temperaturänderung verursachte Brechungsindexänderung im optischen Kristall angibt.

Sein Wert bei einer bestimmten Wellenlänge und Temperatur wird in der Praxis üblicherweise über die Ableitung der temperaturabhängigen Sellmeiergleichung nach der Temperatur ermittelt. Der Genauigkeit dieser Methode ist jedoch Grenzen gesetzt. Wie die Wellenlängenabhängigkeit beruht nämlich auch die Temperaturabhängigkeit von Sellmeiergleichungen in der Regel auf Messungen des absoluten Brechungsindex. Auch wenn damit die Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex sehr gut wiedergegeben werden kann, kann ein vergleichsweise kleiner Fehler in ihrer Bestimmung aufgrund der geringen Größe des thermooptischen Koeffizienten bereits zu einem großen Fehler im thermooptischen Koeffizienten führen.

Daher soll in dieser Arbeit eine Messmethode vorgestellt und angewendet werden, mit der der thermooptische Koeffizient direkt bestimmt werden kann. Da der thermooptische Koeffizient von Lithiumniobat mit einer Größenordnung von $10^{-5}/K$ sehr klein ist, wird eine interferometrische Messmethode gewählt werden.

Von Interesse ist zudem die Temperatur- und Wellenlängenabhängigkeit des thermooptischen Koeffizienten. Daher wird er mithilfe eines durchstimmbaren Lasers im sichtbaren Spektralbereich von 460 nm bis 600 nm und im nahinfraroten Spektralbereich von 900 nm bis 1130 nm bei mehreren Wellenlängen jeweils im Temperaturbereich von $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ bis $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ und in ordentlicher sowie außerordentlicher Polarisation vermessen.

2 Grundlagen

2.1 Lithiumniobat

Lithiumniobat ist ein nicht natürlich vorkommender Kristall mit der Summenformel LiNbO_3 . Er wurde erstmals 1949 von MATTHIAS und REMEIKA synthetisiert [vgl.

Matthias u. a., 1949] und findet seitdem vielfach Anwendung in Wissenschaft und Technik. Heutzutage wird er üblicherweise durch Ziehen aus einer Schmelze nach dem Stochalsky-Verfahren hergestellt.

Strukturell gehört Lithiumniobat zum trigonalen Kristallsystem. Es besitzt eine rhomboedrische Elementarzelle mit einer zehn-atomigen Basis bestehend aus zwei Formeleinheiten LiNbO_3 , üblich ist jedoch die Darstellung im System einer hexagonalen Einheitszelle, da in dieser die Symmetrieeigenschaften des Kristalls besser erkennbar sind. Gruppentheoretisch lässt sich das zu Lithiumniobat passende Punktgitter der Punktgruppe $\bar{3}m$, beziehungsweise unterhalb der Curie-Temperatur der Punktgruppe $3m$, zuordnen. Das heißt, es liegt eine Rotationssymmetrie mit dreizähliger Rotationsachse sowie eine Spiegelsymmetrie und zum Teil eine Inversionssymmetrie vor. [vgl. Wong, 2002, S. 3 ff.]

Es hat sich eingebürgert, Lithiumniobat in einem rechtwinkligen, rechtshändigen Koordinatensystem mit den Achsenamen x , y , und z zu beschreiben. Die x -Achse fällt dabei mit einer der gleichwertigen Achsen der Grundseite der hexagonalen Einheitszelle und die z -Achse mit der orthogonal dazu stehenden Achse der hexagonalen Einheitszelle zusammen. Jeder Achse wird außerdem eine Polarität zugeordnet. Dabei weisen y - und z -Achse in Richtung der Seite, an der sich bei Kompression des Kristalls aufgrund des piezoelektrischen Effekts negative Ladungsträger ansammeln. Die Lage der y -Achse sowie die Polarität der x -Achse sind aufgrund der Rechtshändigkeit des Koordinatensystems dann ebenfalls eindeutig definiert. Die oben erwähnte, dreizählige Rotationssymmetrieachse fällt mit der z -Achse zusammen. Die drei Spiegelsymmetrieebenen liegen orthogonal zur x -Achse sowie gemäß der Rotationssymmetrie um $\pm 120^\circ$ dazu versetzt. [vgl. Weis u. a., 1985, S. 192, 195]

Lithiumniobat besitzt eine ferroelektrische Curie-Temperatur von ca. 1200°C ¹. Oberhalb davon ist es paraelektrisch, unterhalb davon ferroelektrisch. In der paraelektrischen Phase wechseln sich Lithium- und Niobionen in gleichen Abständen entlang der z -Achse ab. Orthogonal zur z -Achse liegen Ebenen aus Sauerstoffionen, die so angeordnet sind, dass sie zusammen eine verzerrte hexagonal dichteste Kugelpackung ergeben und ihre Zwischenräume zu je einem Drittel mit Lithium, Niob beziehungsweise nicht besetzt sind. Dabei befindet sich Lithium immer genau in einer Ebene und Niob genau zwischen zwei Ebenen aus Sauerstoffionen (vgl. Abbildung 1 (a)).

¹ Der genaue Wert variiert je nach Zusammensetzung und eventueller Dotierung.

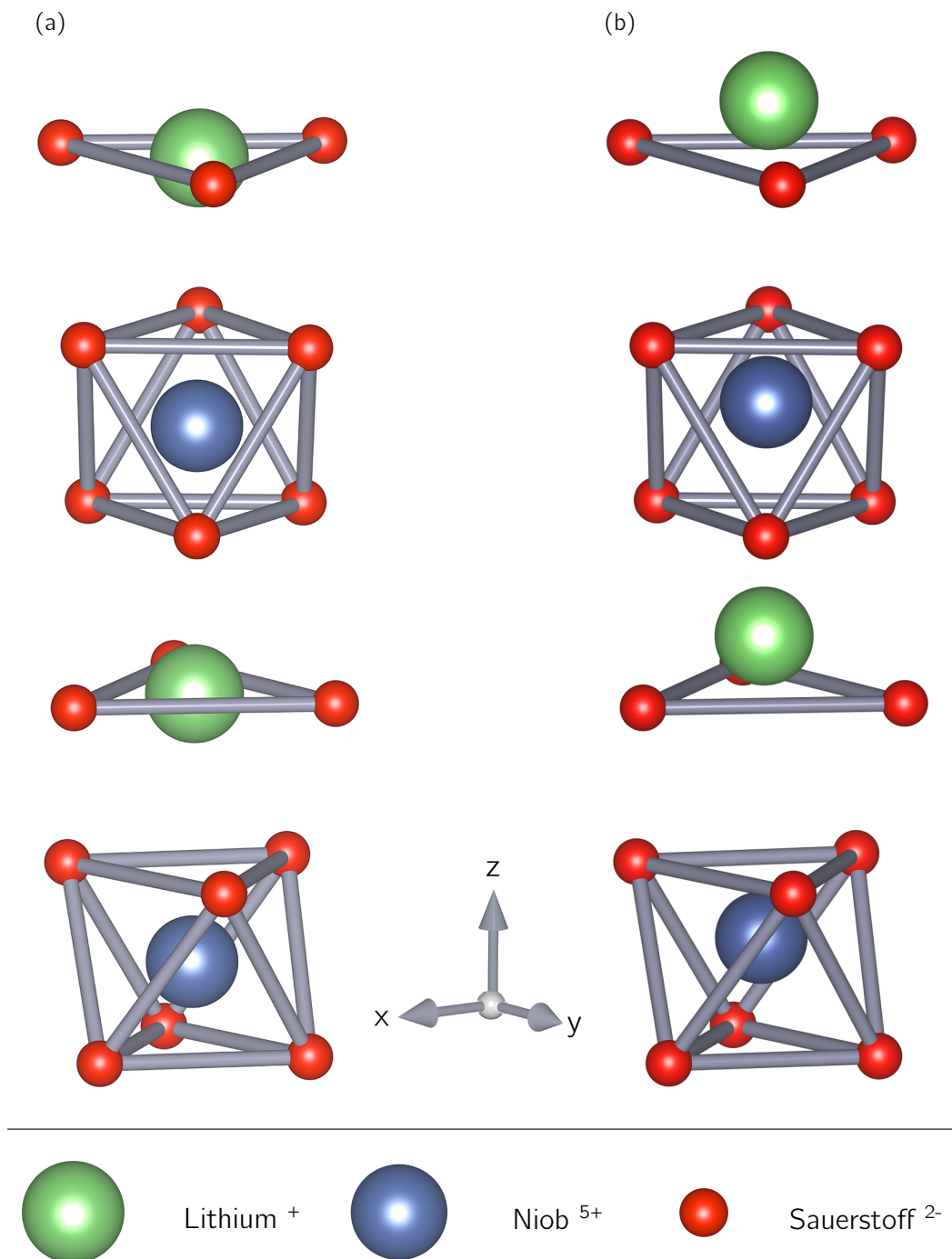


Abbildung 1: (a) paraelektrische und (b) ferroelektrische Phase von Lithiumniobat

Auschnitt der Kristallstruktur von Lithiumniobat. In der paraelektrischen Phase (a) ist die Position der Lithium- (grün) und Niobionen (blau) symmetrisch in Bezug auf die zur z-Achse orthogonalen Ebenen aus Sauerstoffionen (rot), in der ferroelektrischen Phase (b) sind sie hingegen entlang der z-Achse aus der Gleichgewichtslage ausgelenkt. Dadurch wird die z-Achse zur polaren Achse ²

² Die Abbildung wurde erstellt mit dem 3D-Visualisierungsprogramm für Kristallographie Vesta in der Version 3.2.1 [Momma u. a., 2011] auf der Basis von kristallographischen Daten aus [Hsu u. a., 1997], veröffentlicht in der *Crystallography Open Database* [Grazulis u. a., 2011].

In der ferroelektrischen Phase sind Lithium und Niob hingegen leicht, allerdings unterschiedlich stark, in positive Richtung der z-Achse verschoben (vgl. Abbildung 1 (b)). Dadurch liegt die für Ferroelektrizität nötige spontane Polarisierung vor. Sie ist die Ursache für eine Reihe interessanter Effekte. Die Inversionssymmetrie muss dafür allerdings verloren gehen, sodass ferroelektrisches Lithiumniobat nur noch der Punktgruppe $3m$ angehört. Aufgrund der hohen Curie-Temperatur werden in dieser Arbeit nur Lithiumniobatproben in der ferroelektrischen Phase untersucht. Ich werde mich daher im Folgenden auf diese Phase beschränken.

Optisch ist Lithiumniobat uniaxial doppelbrechend. Das heißt, dass seine Dispersion durch zwei unabhängige Brechungsindizes vollständig beschrieben werden kann. Einer gilt für den orthogonal zur z-Achse polarisierten Anteil des Lichts und heißt *ordentlich*, der andere für den parallel zur z-Achse polarisierte Anteil und heißt demgegenüber *außerordentlich*. Seine optische Achse fällt in Richtung und Orientierung mit der z-Achse zusammen. Aus diesem Grund werden die Begriffe *optische Achse* und *z-Achse* bei Lithiumniobat oft synonym verwendet. Der ordentliche Brechungsindex von Lithiumniobat n_o ist größer als der außerordentliche Brechungsindex n_e . Damit ist es negativ doppelbrechend. Interessant für Anwendungen in der Optik ist zudem sein breites Transparenzfenster. Es reicht von der Bandkante bei 350 nm im nahen UV (resultierend aus einer Bandlücke von 4 eV) bis zu ca. 5000 nm im mittleren IR. Ab dort beginnt die Absorption durch Phononen bedeutsam zu werden.

Aus der Ferroelektrizität von Lithiumniobat folgt, dass es auch pyroelektrisch sowie piezoelektrisch ist. Da in der Kristallsymmetrie kein Inversionszentrum vorliegt, ist es sowohl linear als auch quadratisch elektrooptisch. Zudem ist Lithiumniobat photo-refraktiv, photoelastisch und optisch nichtlinear. Auf die für diese Arbeit relevanten Eigenschaften werde ich in den nächsten Abschnitten näher eingehen.

Einen Lithiumniobat-Kristall mit genau dem Verhältnis an Atomen, wie es die Summenformel vorgibt (*stöchiometrischer* Kristall), herzustellen, bedarf einer kontinuierlichen Steuerung der Zusammensetzung der Schmelze, aus der der Kristall gezogen wird. Andernfalls wächst er mit einer leicht abweichenden Zusammensetzung von $48,45\text{ mol\% Li}_2\text{O}$ und $51,55\text{ mol\% Nb}_2\text{O}_5$ ³. Einige Plätze, an denen sich im stöchiometrischen Fall Lithiumionen befänden, sind hier stochastisch verteilt mit Niobionen besetzt. Einen solchen Kristall nennt man *kongruent schmelzend* oder häufig auch

³ Die Zahlenangabe variiert in der Literatur [vgl. Jundt u. a., 1990].

nur *kongruent*. Er ist in der Herstellung sehr viel günstiger, hat aber nicht in jeder Hinsicht dieselben Eigenschaften wie stöchiometrisches Lithiumniobat. Ein Problem in der Anwendung ist beispielsweise der optische Schaden, dem man durch Injektion von 5 mol% Magnesiumoxid zum kongruenten Kristall zu kompensieren versucht.

In dieser Arbeit sind besonders die optischen Eigenschaften von Lithiumniobat relevant. Daher möchte ich im Folgenden kurz auf die wichtigsten Effekte eingehen, die den Brechungsindex von Lithiumniobat beeinflussen können.

2.2 den Brechungsindex beeinflussende Effekte

2.2.1 thermooptischer Effekt

Ändert man die Temperatur von Lithiumniobat, so ändert sich sein Brechungsindex. Die Kennzahl für den thermooptischen Effekt ist der thermooptische Koeffizient $dn_{o,e}/dT$. Er ist die Steigung der linearen Approximation an den im Allgemeinen nichtlinearen Verlauf des Brechungsindex $n_{o,e}$ mit der Temperatur T :

$$n_{o,e}(T, \lambda) = n_{o,e}(T_S, \lambda) + \frac{dn_{o,e}}{dT}(T_S, \lambda) \cdot (T - T_S) \quad (I)$$

wobei T_S die Stütztemperatur der linearen Approximation darstellt, λ die Vakuumwellenlänge repräsentiert⁴ und die Indizes o beziehungsweise e für *ordentlich* beziehungsweise *außerordentlich polarisiert* stehen. Da eine lineare Approximation in der Regel nur in einem kleinen Bereich gültig ist, ist der thermooptische Koeffizient selbst temperaturabhängig. Wie auch der Brechungsindex besitzt er zudem eine Wellenlängen- und Polarisationsabhängigkeit. Der thermooptische Koeffizient hängt somit von drei Parametern ab. Dies macht seine vollständige Vermessung zeitaufwendig, da er bei allen Kombinationen dieser Parameter bestimmt werden muss.

Dass bei Änderung der Kristalltemperatur eine Brechungsindexänderung auftritt, kann auf mehrere Ursachen zurückgeführt werden. GHOSH hat dafür ein Modell entwickelt, dass zwei Einflussfaktoren als Hauptursache annimmt: Die thermische Ausdehnung des Kristalls sowie die Temperaturabhängigkeit der exzitonischen Bandlücke E_{eg} :

⁴ Mit einer *Wellenlänge* λ sei nachfolgend immer die Vakuumwellenlänge gemeint.

$$\frac{dn_{o,e}}{dT} = \frac{n_{\infty}^2 - 1}{2 \cdot n_{o,e}} \cdot \left[-3 \cdot \alpha_{o,e} \cdot \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_{ig}^2} - \frac{1}{E_{eg}} \cdot \frac{dE_{eg}}{dT} \cdot \left(\frac{\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_{ig}^2} \right)^2 \right] \quad (II)$$

Hierbei ist n_{∞} der statische Brechungsindex, der von GHOSH durch den nur noch wenig dispersiven Brechungsindex von Lithiumniobat im IR approximiert wird, α der thermische Ausdehnungskoeffizient und λ_{ig} die zur Energie der isentropen Bandlücke korrespondierende Wellenlänge. Letztere bestimmt in diesem Modell die Dispersion des thermooptischen Koeffizienten. Ihr Band liegt in Lithiumniobat zwischen dem exzitonischen Niveau und der Leitungsbandkante. GHOSH bezeichnet Gleichung (II) aufgrund der analogen Konstruktionsweise als *Sellmeier-Gleichung des thermooptischen Koeffizienten*. [vgl. Ghosh, 1998, S. 122 ff.]

Bei Erhöhung der Temperatur nimmt die Größe einer Bandlücke ab. Daher ist $\frac{dE_{eg}}{dT}$ negativ. Bedenkt man außerdem, dass der thermische Ausdehnungskoeffizient α in der Regel positiv ist, so folgt aus Gleichung (II), dass der thermooptische Koeffizient je nach Verhältnis von α und $\frac{dE_{eg}}{dT}$ positiv oder negativ sein kann. Da für Lithiumniobat der elektronische Effekt gegenüber der thermischen Ausdehnung in der Regel dominiert, ist sein thermooptischer Koeffizient positiv und nimmt, unter der Annahme, dass die restlichen Parameter in Gleichung (II) konstant seien, mit steigender Temperatur zu [Ghosh, 1998, S. 118].

Eine andere Herangehensweise zur Erklärung des thermooptischen Koeffizienten erfolgt über eine Änderung der spontanen Polarisierung und damit auch der Polarisierbarkeit aufgrund der thermischen Ausdehnung. Zweitens ist über die Clausius-Mossotti-Gleichung mit der Suszeptibilität verbunden und hat dadurch direkt einen Einfluss auf die dielektrische Funktion und somit den Brechungsindex [vgl. Iwasaki u. a., 1967]. Weitere, untergeordnete Einflüsse auf den thermooptischen Koeffizienten haben Defekte und Verunreinigungen sowie eventuell Phasenübergänge.

Unter Verwendung der in [Ghosh, 1994] angegebenen Zahlenwerte sowie der Sellmeiergleichung für kongruentes Lithiumniobat nach [Edwards u. a., 1984] und Approximation von n_{∞} durch $n(\lambda = 1064 \text{ nm})$ kann man den thermooptischen Koeffizienten bei Raumtemperatur (25°C) mithilfe von Gleichung (II) abschätzen (vgl. Tabelle 1). Man sieht, dass der thermooptische Koeffizient mit steigender Wellenlänge abnimmt und in ordentlicher Polarisierung zwischen einer halben und einer Größenordnung kleiner ist als in außerordentlicher Polarisierung.

dn/dT	o-pol	e-pol
633 nm	$2 \cdot 10^{-5}/K$	$7 \cdot 10^{-5}/K$
1064 nm	$8 \cdot 10^{-6}/K$	$5 \cdot 10^{-5}/K$

Tabelle 1: Theoriewerte nach Ghosh
thermooptischer Koeffizient von kongruentem Lithiumniobat in ordentlicher und außerordentlicher Polarisation bei 633 nm bzw. 1064 nm und 25 °C, abgeschätzt mithilfe von Gleichung (II).

Die in der Praxis übliche Form, den thermooptischen Koeffizienten zu ermitteln, ist allerdings die Ableitung der temperaturabhängigen Sellmeiergleichung nach der Temperatur. In Abbildung 2 ist dies auf Basis der Sellmeiergleichung für kongruentes Lithiumniobat nach EDWARDS et. al. [Edwards u. a., 1984] dargestellt. Man sieht, dass die oben vorgestellte Abschätzung des Verlaufs und der Größenordnungen nach GHOSH bestätigt wird. Die absoluten Zahlenwerte weichen jedoch zum Teil bereits in der ersten geltenden Ziffer voneinander ab. Eine experimentelle Bestimmung des thermooptischen Koeffizienten ist also sinnvoll.

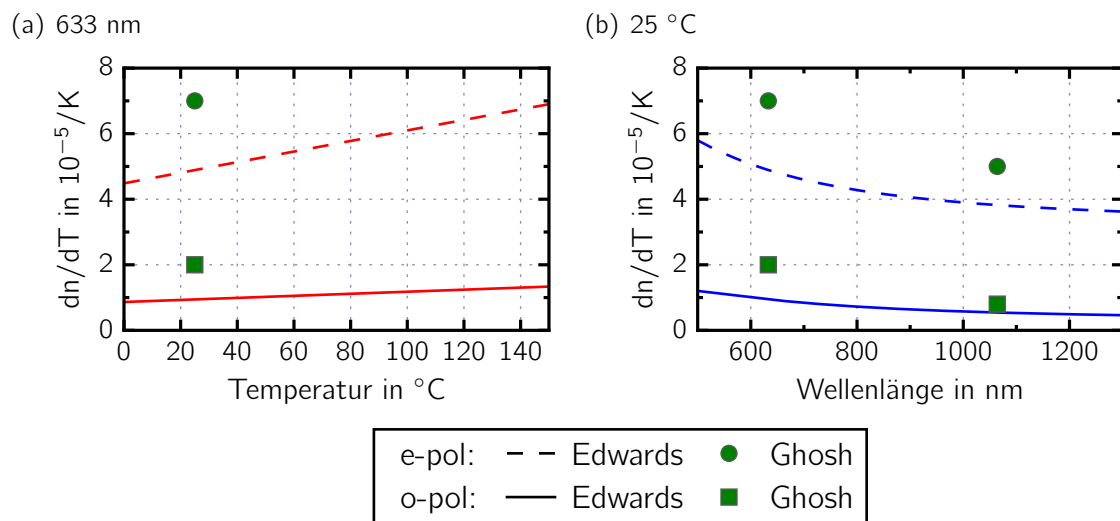


Abbildung 2: thermooptischer Koeffizient - theoretischer Verlauf nach Edwards bzw. Ghosh
thermooptischer Koeffizient von kongruentem Lithiumniobat in Abhängigkeit von der Kristalltemperatur bei 633 nm (a) beziehungsweise in Abhängigkeit von der Wellenlänge bei 25 °C (b), berechnet aus der Sellmeier-Gleichung nach [Edwards u. a., 1984] durch Ableiten derselbigen nach der Temperatur. Zum Vergleich sind zudem die in Tabelle 1 angegebenen Abschätzungen nach GHOSH eingezeichnet (Punkte, grün) ⁵

Da in dieser Arbeit nur der thermooptische Koeffizient vermessen werden soll, sind alle nachfolgend vorgestellten Effekte unerwünscht und nach Möglichkeit experimentell zu unterbindende Einflüsse auf den Brechungsindex.

⁵ Diese sowie alle nachfolgenden Graphen wurden mithilfe von *matplotlib* [Hunter, 2007] und der Programmiersprache *Python* erstellt.

2.2.2 elektrooptischer Effekt

Als (*primär*) *elektrooptischen Effekt* bezeichnet man die Änderungen des Brechungsindex durch ein zeitlich konstantes oder niederfrequentes elektrisches Feld. Dieses verursacht eine Verschiebungspolarisation sowie eine entgegengesetzte Verschiebung der positiv und negativ geladenen Anteile des Gitters, was beides eine Änderung der Polarisierbarkeit und damit des Brechungsindex zur Folge hat. In ferroelektrischem Lithiumniobat treten aufgrund der fehlenden Inversionssymmetrie sowohl der *lineare* als auch der *quadratische* elektrooptische Effekt auf. Der linear elektrooptische Effekt, auch *Pockels-Effekt* genannt, dominiert jedoch deutlich [Weis u. a., 1985, S. 202]. Ich werde daher im Folgenden nur auf diesen eingehen.

Aufgrund der Anisotropie von Lithiumniobat lässt sich der linear elektrooptische Effekt mathematisch am besten in Tensorschreibweise darstellen [vgl. z. B. Weis u. a., 1985, S. 198]. Ich möchte hier jedoch nur die komponentenweise Darstellung für ein elektrisches Feld E_z entlang der z-Achse angeben [Wong, 2002, S. 131 f.]:

$$n_x = n_y = n_o + n_o^3 \cdot r_{13} \cdot E_z / 2 \quad (\text{III.a})$$

$$n_z = n_e + n_e^3 \cdot r_{33} \cdot E_z / 2 \quad (\text{III.b})$$

Hierbei bezeichnen n_x , n_y und n_z die Brechungsindizes entlang der drei Kristallachsen und r_{13} sowie r_{33} zwei Komponenten des linear elektrooptischen Tensors in verkürzter Schreibweise.

Bei den in dieser Arbeit durchgeführten Messungen wird kein elektrisches Feld von außen angelegt. Es gibt jedoch eine Reihe von Effekten in Lithiumniobat, die die Ausbildung eines elektrischen Feldes über den Kristall verursachen und damit indirekt den linear elektrooptischen Effekt auslösen können:

pyroelektrischer Effekt

Der *pyroelektrische Effekt* ist die Ausbildung eines elektrischen Feldes aufgrund von Erwärmung und tritt in allen Materialien mit spontaner Polarisierung auf. Er ist nur bei Temperaturänderung wirksam und klingt wieder ab, sobald die Temperatur des Kristalls erneut konstant ist. Mikroskopisch ist dies auf eine Änderung der spontanen Polarisierung aufgrund thermischer Ausdehnung zurückzuführen, was mit der Ausbildung von Kompensationsladungen an den Oberflächen des Kristalls einhergeht. Diese verursachen ein makroskopisches elektrisches Feld. Aufgrund von Drift und Rekomp-

bination bauen sich die Kompensationsladungen bei konstanter Temperatur wieder ab. Da die spontane Polarisierung in Lithiumniobat nur entlang der z-Achse existiert, bildet sich auch das elektrische Feld $E_{z,pyro}$ ausschließlich entlang dieser Achse aus. Es skaliert linear mit der Temperaturänderung ΔT [Buse, 1997, S. 274]:

$$E_{z,pyro} = -\frac{1}{\varepsilon_0 \cdot \varepsilon_{33}} \cdot \wp_3 \cdot \Delta T \quad (IV)$$

Hierbei ist ε_0 die elektrische Feldkonstante, ε_{33} eine Komponente des Tensors der relativen Permittivität und \wp_3 die einzige von Null verschiedene Komponente des pyroelektrischen Tensors.

Mit Gleichung (IV) lässt sich die Größenordnung des pyroelektrischen Effekts abschätzen. Für kongruentes Lithiumniobat ergibt sich bei 633 nm und 25°C für eine Temperaturänderung von $\Delta T = 1 \text{ K}$ ein pyroelektrisches Feld $E_{z,pyro}$ von ⁶:

$$E_{z,pyro} = 1,6 \text{ kV/cm}$$

Dies verursacht gemäß Gleichung (III) folgende Brechungsindexänderung aufgrund des linear elektrooptischen Effekts ⁷:

$$\begin{aligned} \Delta n_{x,y} &= n_{x,y} - n_o = 7 \cdot 10^{-6} \\ \Delta n_z &= n_z - n_e = 2 \cdot 10^{-5} \end{aligned}$$

In ordentlicher Polarisierung ist diese Brechungsindexänderung eine Größenordnung kleiner als der in Tabelle 1 abgeschätzte Einfluss des thermooptischen Effekts auf den Brechungsindex, in außerordentlicher Polarisierung liegt er sogar in der gleichen Größenordnung. Da die Brechungsindexänderung aufgrund des pyroelektrischen Effekts linear mit der Temperaturänderung ΔT skaliert, folgt aus obiger Abschätzung: Will man den thermooptischen Koeffizienten auf beispielsweise zwei geltende Ziffern genau bestimmen, so muss man ab einer Temperaturänderung von 10 mK den pyroelektrischen Einfluss auf den Brechungsindex als parasitären Effekt in der Konstruktion der Messmethode für den thermooptischen Koeffizienten berücksichtigen.

⁶ $\varepsilon_{33} = 27,9$ [Weis u. a., 1985, S. 197]
 $\wp_3 = -4 \cdot 10^{-5} \text{ C}/(\text{K} \cdot \text{m}^2)$ [Weis u. a., 1985, S. 196]

⁷ $n_o = 2,28641$ [Edwards u. a., 1984]
 $r_{13} = 7,7 \cdot 10^{-12} \text{ m/V}$ und $r_{33} = 28,8 \cdot 10^{-12} \text{ m/V}$ [Weis u. a., 1985, S. 199]

Volumen-photovoltaischer Effekt

Ein weiterer ein elektrisches Feld erzeugender Effekt ist der *Volumen-photovoltaische Effekt*. Für ihn verantwortlich sind auf den gesamten Kristall verteilte Verunreinigungen, die als Photozentren wirken. Aus diesen werden durch Beleuchtung Elektronen in das Leitungsband angehoben, welche anschließend entlang der optischen Achse driften. Werden sie an anderer Stelle wieder eingefangen, führt dies zu einer makroskopischen Polarisierung des Kristalls und damit zu einem elektrischen Feld. Die so erzeugte Photospannung kann zudem sehr viel höher sein als die an einem p-n-Übergang mögliche, da die an den einzelnen Photozentren erzeugten Photospannungen sich in Reihenschaltung zur messbaren Photospannung addieren. Zur Abgrenzung vom photovoltaischen Effekt an einem p-n-Übergang bezeichnet man diesen Effekt als *Volumen-photovoltaischen Effekt* [Grousson u. a., 1983, S. 199]. Eine photoinduzierte Ladungsmigration aufgrund des Volumen-photovoltaischen Effekts, Drift oder Diffusion und den dadurch verursachten linear elektrooptischen Effekt bezeichnet man zusammenfassend auch als *photorefraktiven Effekt* [Weis u. a., 1985, S. 202].

piezoelektrischer Effekt

Der *piezoelektrische Effekt* als Quelle eines elektrischen Feldes tritt auf, wenn mechanische Spannungen auf den Lithiumniobatkristall einwirken. Ist diese mechanische Spannung durch eine Temperaturänderung bzw. einen räumlichen Temperaturgradienten induziert, so spricht man auch vom *sekundären* bzw. *tertiären pyroelektrischen Effekt* [vgl. Hu u. a., 1987]. Das Zusammenspiel des piezoelektrischen Effekts mit dem linear elektrooptischen Effekt bezeichnet man zusammenfassend auch als *sekundärer elastooptischen Effekt*.

2.2.3 elastooptischer Effekt

Unter dem (*primär*) *elastooptischen Effekt* versteht man die Änderung des Brechungsindex aufgrund einer Dehnung (engl. *strain*) des Kristall. Eine Dehnung wird in der Regel durch mechanische Spannung (engl. *stress*) verursacht, der Zusammenhang ist für den elastischen Fall mathematisch durch das Hook'sche Gesetz gegeben [vgl. Weis u. a., 1985, S. 199].

Neben einer von außen induzierten mechanischen Spannung kann diese in Lithiumniobat auch durch den *invers piezoelektrischen Effekt* hervorgerufen werden. Dieser tritt bei Anlegen eines elektrischen Feldes auf. Der invers piezoelektrische Effekt in Zusammenspiel mit dem elastooptischen Effekt wird auch *sekundär elektrooptischer Effekt* genannt.

Primär- und Sekundäreffekte treten immer gemeinsam auf, da sie dieselbe Ursache haben. Sie lassen sich experimentell nicht ohne weiteres unterscheiden, weil sie direkt oder indirekt die gleiche Folge haben. Der Einfluss des Primäreffektes überwiegt jedoch in der Regel.

Zusätzlich zu den bisher vorgestellten Effekten ist Lithiumniobat *optisch nichtlinear*. Da in den Experimenten dieser Arbeit jedoch nur geringe Laserleistungen von höchstens 5 mW und entsprechend geringe Intensitäten vorliegen (vgl. Abschnitt 3.3), kann das Auftreten nichtlinearer Effekte ausgeschlossen werden.

3 experimentelle Methode

3.1 Messprinzip

Wie die Abschätzung in Abschnitt 2.2.1 zeigt, muss zur Bestimmung des thermo-optischen Koeffizienten die Änderung des Brechungsindex bei Änderung der Kristalltemperatur mit hoher Genauigkeit bestimmt werden. Für eine solche Aufgabe ist eine interferometrische Messung prädestiniert.

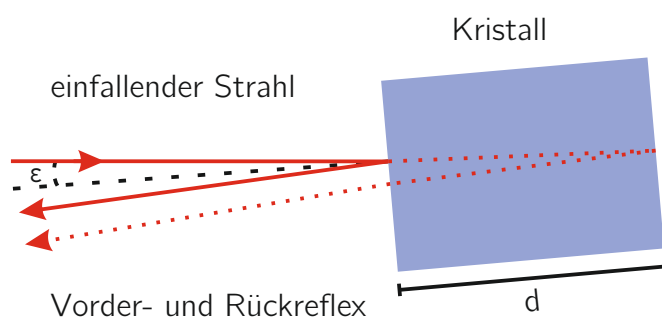


Abbildung 3: Interferometer

Prinzipskizze der Verwendung des zu vermessenden Kristalls als Fabry-Pérot-Interferometer. Der Kristall der Länge d ist gegenüber dem einfallenden Strahl um den Winkel ε leicht verkippt, sodass Vorder- und Rückseitenreflex von ihm getrennt und zur Interferenz gebracht werden können.

Die Hauptidee in dem in dieser Arbeit verwendeten Messaufbau ist, den Kristall selbst als Fabry-Pérot-Interferometer zu verwenden. Zur Interferenz gebracht werden dabei der Reflex an der Vorderseite des Kristalls mit dem durch eine Änderung der optischen Weglänge im Kristall beeinflussten Rückseitenreflex. Um Vorder- und Rückreflex vom einfallenden Strahl trennen zu können, wird der Kristall bezüglich diesem um den Winkel $\varepsilon < 2^\circ$ leicht verkippt (vgl. hierzu Abbildung 3).

Das bei Überlagerung der beiden Teilstrahlen entstehende Interferenzstreifenmuster hat ein sinusförmiges Intensitätsprofil mit einem im Idealfall gaußförmigen Strahlprofil als Einhüllende. Bei Änderung der Kristalltemperatur scheint es orthogonal zur Streifenrichtung zu „wandern“, da sich der optische Weglängenunterschied zwischen

den Teilstrahlen verändert. Dies entspricht aus Sicht eines ortsfesten Punktes im Interferenzmuster einer sinusförmigen Intensitätsschwankung. Aus der Periodenlänge dieser Schwankung können Rückschlüsse auf die Brechungsindexänderung im Kristall und damit den thermooptischen Koeffizienten gezogen werden.

Eine Messung nach diesem Prinzip hat gegenüber beispielsweise einem Michelson-Interferometer mit getrenntem Mess- und Referenzarm den Vorteil, dass beide Teilstrahlen vor und nach dem Kristall den gleichen Weg nehmen. Eine Änderung des Interferenzmusters beruht daher immer auf Vorgängen im Kristall (von einer Verschiebung des gesamten Interferenzmusters aufgrund schlecht fixierter Komponenten einmal abgesehen). Die nachfolgende Herleitung der Messgleichung darf sich daher auf den Strahlengang im Kristall beschränken. Eine Brechungsindexänderung der Umgebungsluft bei Erwärmung des Kristalls muss ebenfalls nicht berücksichtigt werden. Zudem bezieht sich der nach diesem Prinzip ermittelte thermooptische Koeffizient direkt auf den absoluten Brechungsindex und nicht auf denjenigen relativ zur Umgebungsluft, wie es beispielsweise bei einer Messung des Brechungsindex mithilfe der minimalen Ablenkung eines Strahls an einem Prisma der Fall wäre.

3.2 Herleitung der Messgleichung

Eine Änderung des im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Interferenzstreifenmusters bei Variation der Kristalltemperatur wird verursacht durch eine Änderung der optischen Weglänge $L_{o,e}$ im Kristall. Letztere setzt sich multiplikativ aus zwei Komponenten zusammen: Dem geometrischen Weg l , den der an der Rückseite des Kristalls reflektierte Strahl im Kristall zurücklegt, und dem Brechungsindex $n_{o,e}$ im Kristall:

$$L_{o,e}(T, \lambda) = l(T) \cdot n_{o,e}(T, \lambda) \quad (\text{V})$$

Die Änderung der Kristalllänge und damit des geometrischen Weges mit der Temperatur wird üblicherweise mithilfe des linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten α über eine lineare Näherung an der Stütztemperatur T_S dargestellt:

$$\begin{aligned} l(T) &= l(T_S) + l(T_S) \cdot \alpha(T_S) \cdot (T - T_S) \\ &= l_S + l_S \cdot \alpha_S \cdot \Delta T \end{aligned} \quad (\text{VI})$$

Für die Änderung des Brechungsindex mit der Temperatur ist im Idealfall ausschließlich der thermooptische Effekt verantwortlich. Dann gilt analog Gleichung (I). Aus den Gleichungen (I), (V) und (VI) folgt für die Änderung der optischen Weglängen

ge $\Delta L_{o,e}$ aufgrund einer Temperaturänderung ΔT :

$$\begin{aligned}\Delta L_{o,e}(\Delta T, \lambda) &= L_{o,e}(T, \lambda) - L_{o,e}(T_S, \lambda) \\ &= l_S \cdot \Delta T \cdot \left[\alpha_S \cdot n_{o,e}(T_S, \lambda) + \frac{dn_{o,e}}{dT}(T_S, \lambda) \cdot (1 + \alpha_S \cdot \Delta T) \right] \\ &\approx l_S \cdot \Delta T \cdot \left[\alpha_S \cdot n_{o,e}(T_S, \lambda) + \frac{dn_{o,e}}{dT}(T_S, \lambda) \right] \quad (\text{VII})\end{aligned}$$

Das quadratische Glied der Temperaturänderung kann hierbei vernachlässigt werden, da der thermische Ausdehnungskoeffizient von Lithiumniobat um mehrere Größenordnungen kleiner als 1 ist und die in dieser Arbeit verwendeten Temperaturänderung 10K nicht übersteigen. Somit gilt die Näherung $1 + \alpha_S \cdot \Delta T \approx 1$ mit hoher Genauigkeit.

Messtechnisch lässt sich gut feststellen, bei welcher Temperaturänderung $\Delta T_{2\pi}$ das Interferenzstreifenmuster an einem ortsfesten Punkt von einem zum nächsten Intensitätsmaximum (bzw. -minimum) „gewandert“ ist - sprich der Übergang von einer zur nächsten im Idealfall vollständig konstruktiven (bzw. destruktiven) Interferenz. Dafür muss sich der optische Weg im Kristall genau um die Wellenlänge des verwendeten Laserlichts geändert haben:

$$\Delta L_{o,e}(\Delta T_{2\pi}, \lambda) \stackrel{!}{=} \lambda \quad (\text{VIII})$$

Beachtet man zudem, dass die geometrische Länge l in Kleinwinkelnäherung dem doppelten der Kristalllänge d entspricht (vgl. Abbildung 3), so folgt aus Gleichung (VII) und der Interferenzbedingung (VIII) die Messgleichung:

$$\frac{dn_{o,e}}{dT}(T_S, \lambda) \approx \frac{\lambda}{2 \cdot d(T_S) \cdot \Delta T_{2\pi, o,e}(T_S, \lambda)} - \alpha(T_S) \cdot n_{o,e}(T_S, \lambda) \quad (\text{IX})$$

Die im Experiment zu ermittelnde Größe ist also $\Delta T_{2\pi, o,e}(T_S, \lambda)$, aus der der thermooptische Koeffizient mittels Gleichung (IX) errechnet werden kann. Der Brechungsindex $n_{o,e}$ sowie der thermische Ausdehnungskoeffizient α des vermessenen Kristalls müssen dafür allerdings bekannt sein. Gerade für letzteren variieren die Literaturangaben von $14,0 \cdot 10^{-6}/K$ bis $15,2 \cdot 10^{-6}/K$ deutlich [vgl. Wong, 2002, S. 76]. Diese Variation kann aufgrund der Differenzbildung in Gleichung (IX) einen großen Einfluss auf den errechneten thermooptischen Koeffizienten haben (vgl. auch Abschnitt 5.5).

Die Länge des Kristalls d vermisst man zudem in der Regel nur bei der Raumtemperatur T_R . Mithilfe des thermischen Ausdehnungskoeffizienten kann die Kristalllänge

an der Stütztemperatur T_S jedoch leicht berechnet werden:

$$d(T_S) = d(T_R) + d(T_R) \cdot \int_{T_R}^{T_S} \alpha(T') dT' \quad (\text{X})$$

Bei der hier vorgestellten Herleitung wurde davon ausgegangen, dass die Brechungsindexänderung in Gleichung (I) allein auf den thermooptischen Effekt zurückzuführen ist. Sollte dies nicht erfüllt sein, gilt die Messgleichung nicht! Daher ist es wichtig, einen Einfluss aller weiteren in Abschnitt 2.2 vorgestellten Effekte bei Durchführung der Messungen nach Möglichkeit zu verhindern.

3.3 Laserlichtquelle

Die in dieser Arbeit verwendete Laserlichtquelle ist eine Eigenentwicklung des Fraunhofer IPM in der Endphase des Entwicklungsprozesses. Mit ihr ist es möglich, im sichtbaren sowie nahinfraroten Spektralbereich automatisiert und kleinschrittig die Wellenlänge durchzustimmen. Ausgenutzt werden dazu nichtlineare Prozesse in Lithiumniobat und ähnlichen Kristallen. Dies geschieht in einem *optisch parametrischen Oszillator* (kurz *OPO*). Er besteht aus einem nichtlinearen Kristall und einem passend dimensionierten Resonator. Dieser wird mit einem starken Laser gepumpt. Als Pumpwellenlänge wird hier 532 nm verwendet. Der nichtlineare Kristall erzeugt aus jedem Pumpphoton unter Einhaltung des Energieerhaltungssatzes zwei Photonen unterschiedlicher Energie. Das Photon höherer Energie wird *Signal* genannt und hat eine Wellenlänge kleiner dem Doppelten der Pumpwellenlänge. Das Photon niedrigerer Energie heißt *Idler* und hat eine Wellenlänge größer dem doppelten der Pumpwellenlänge. Die Steuerung, in welcher Weise die Energie des Pumpphotons auf Signal und Idler aufgeteilt wird, erfolgt über die Phasenanpassungsbedingung, einem Impulserhaltungssatz. Eine Möglichkeit zur Realisierung dieser Bedingung ist, den nichtlinearen Kristall mit einer Polungsperiode zu strukturieren, sodass seine optische Achse in regelmäßigen Abständen die Richtung umkehrt. Über die Temperatur des Kristalls kann die Polungsperiode und damit die Phasenanpassungsbedingung geändert werden, was eine veränderte Signal- und Idlerwellenlänge zur Folge hat. Die Bedienung ist somit sehr einfach: Man ändert die Temperatur des OPO-Kristalls und nach Erreichen des thermischen Gleichgewichts steht eine andere Wellenlänge zur Verfügung.

Der OPO hat zwei Zweige, den Signalzweig von 900 nm bis 1064 nm und den Idlerzweig von 1064 nm bis 1300 nm . Um 1064 nm besteht eine Lücke, in der die Wellenlängenselektion nur schwer stabilisiert werden kann. Je nach verwendetem Spiegelsatz des Resonators kann man einen der beiden Zweige nutzen.

Um außerdem noch den sichtbaren Spektralbereich abdecken zu können, ist dem OPO eine SHG-Einheit nachgeschaltet. *SHG* steht hierbei für *second harmonic generation*, zu Deutsch: Frequenzverdopplung. Der frequenzverdoppelte Signalzweig reicht von 450 nm bis 532 nm und der frequenzverdoppelte Idlerzweig von 532 nm bis 650 nm .

Das Laserlicht des OPOs ist linear polarisiert. Es hat im NIR eine Leistung von bis zu 100 mW . Für die Messungen dieser Arbeit wurde es auf ca. 3 mW abgeschwächt. Die Leistung des SHG-Lichtes liegt hingegen deutlich unter einem Milliwatt, da es im aktuellen Entwicklungsstand noch nicht phasenangepasst ist. Mithilfe eines Strahlprofilmessgeräts wurde ein Strahldurchmesser von $300\text{ }\mu\text{m}$ bestimmt. Damit folgt eine Intensität von etwa 4 W/cm^2 im NIR und maximal $1,4\text{ W/cm}^2$ im VIS. Da sich der Strahldurchmesser bei jedem Wechsel des OPO-Spiegelsatzes jedoch leicht ändern kann, sind dies nur Anhaltspunkte. In allen vier Zweigen können zudem kleine Leistungsschwankungen sowie Modensprünge auftreten. Die in dieser Arbeit verwendeten Wellenlängen wurden mit einem Spektrometer auf $\pm 1\text{ nm}$ genau bestimmt.

Zum Testen des nachfolgend vorgestellten Messaufbaus wurde außerdem ein stabili-sierter Helium-Neon-Laser der Wellenlänge $632,8\text{ nm}$ mit einer Ausgangsleistung von maximal 5 mW verwendet. Auch einige der in Kapitel 5 gezeigten Messungen wurden mit diesem Laser durchgeführt. Zu erkennen ist dies an der Nachkommastelle in der Wellenlängenangabe.

3.4 Messaufbau

Der Messaufbau ist in Abbildung 4 schematisch dargestellt. Er ist vollständig auf einem schwingungsgedämpften optischen Tisch, nachfolgend *Labortisch* genannt, befestigt. Ich werde ihn nun entlang des Strahlverlaufs erläutern.

Der vom Laser kommende Strahl ist senkrecht zum Labortisch linear polarisiert. Um sowohl in ordentlicher als auch außerordentlicher Polarisation messen zu können ist jedoch ein - möglichst automatisierter - Wechsel zwischen parallel und senkrecht zur optischen Achse polarisiertem Laserlicht nötig. Dies entspricht für die vermes-senen Kristalle in diesem Aufbau einer Polarisation parallel oder senkrechten zum Labortisch. Daher wird der Strahl zunächst über eine Konstruktion aus drei Spiegeln so umgelenkt, dass er im 45° -Winkel zum Labortisch linear polarisiert ist (vgl. dazu Abbildung 5). Passiert er anschließend den breitbandig polarisierenden Strahlteiler-würfel (in Abbildung 4 *Polarisator* genannt), so kann durch Rotation desselben um die

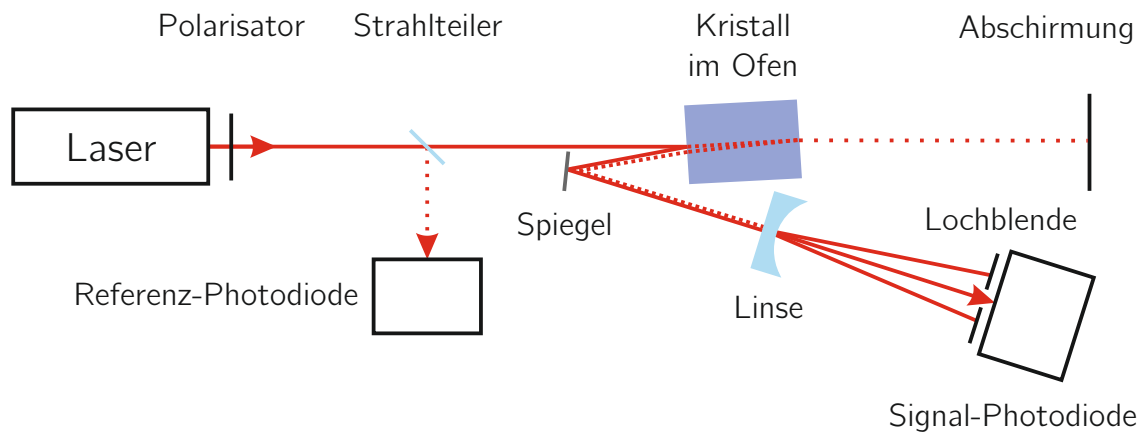


Abbildung 4: schematische Darstellung des Messaufbaus

Zwischen Laser und Polarisator befindet sich zusätzlich die in Abbildung 5 dargestellte Konstruktion zum Drehen der Polarisations Ebene des Laserlichts um 45° . Bis auf diesen Abschnitt erfolgt die Strahlführung komplett waagrecht zum Labortisch. Der gesamte Aufbau ist eingehaust, um ihn vor Raumlicht und Laborwind zu schützen

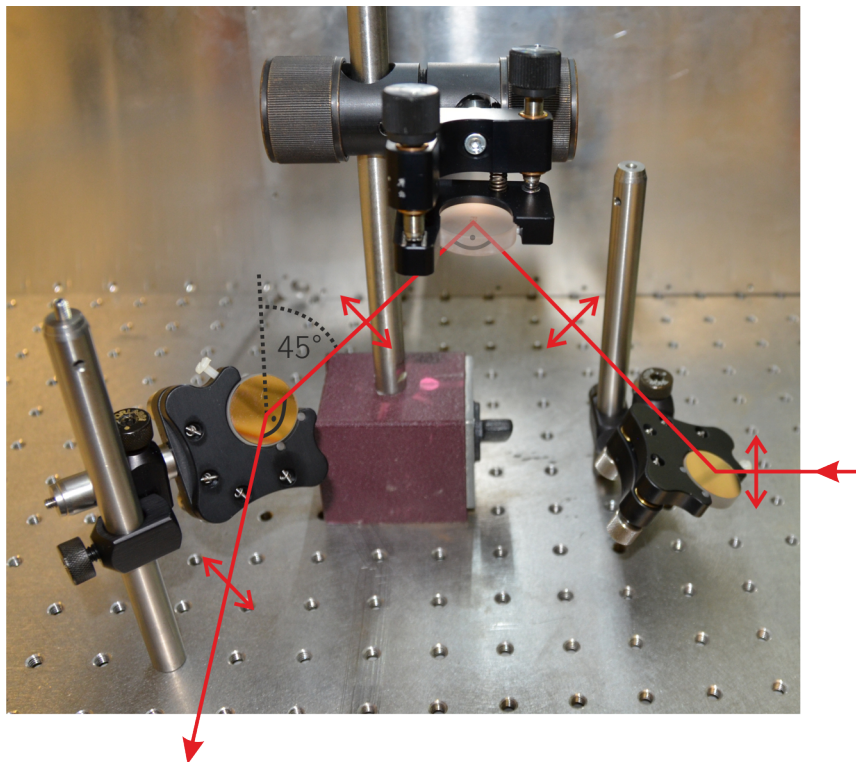


Abbildung 5: Polarisationsdreher über drei Spiegel

Der auf den ersten Spiegel treffende Strahl ist senkrecht zum Labortisch linear polarisiert. Er wird über den zweiten Spiegel so umgelenkt, dass er auf den dritten Spiegel im 45° -Winkel zur Labortischnormalen (schwarz gestrichelt) trifft. Dort wird er wieder in eine Richtung waagrecht zum Labortisch gelenkt. Da die Spiegelebene dabei im 45° -Winkel zum Labortisch geneigt ist und der Strahl senkrecht zu dieser Ebene polarisiert ist, ist er auch nach Passieren des letzten Spiegels im 45° -Winkel zum Labortisch polarisiert. Am zweiten und dritten Spiegel ist der Winkel zwischen einfallendem und reflektiertem Strahl jeweils ein rechter Winkel.

Strahlachse die Polarisationssebene wellenlängenunabhängig und prinzipiell stufenlos gedreht werden. In zum Labortisch waagerechter und senkrechter Polarisatorstellung (den hier benötigten Positionen) ist zudem die Ausgangsintensität gleich groß. Die Verwendung einer $\lambda/2$ -Platte für den gleichen Zweck wäre hier nachteilig, da eine solche jeweils nur für eine bestimmte Wellenlänge optimiert ist.

Die Referenz-Photodiode dient zur Erfassung der Leistungsschwankungen des Lasers. Als Strahlteiler wird hier ein Glas (UV Fused Silica) verwendet, da dieses eine hohe Transmittivität aufweist und über einen weiten Spektralbereich als Strahlteiler anwendbar ist. Es ist mit 5 mm so dick, dass keine Gefahr einer Interferenz der Reflexe von Vorder- und Rückseite des Glases besteht.

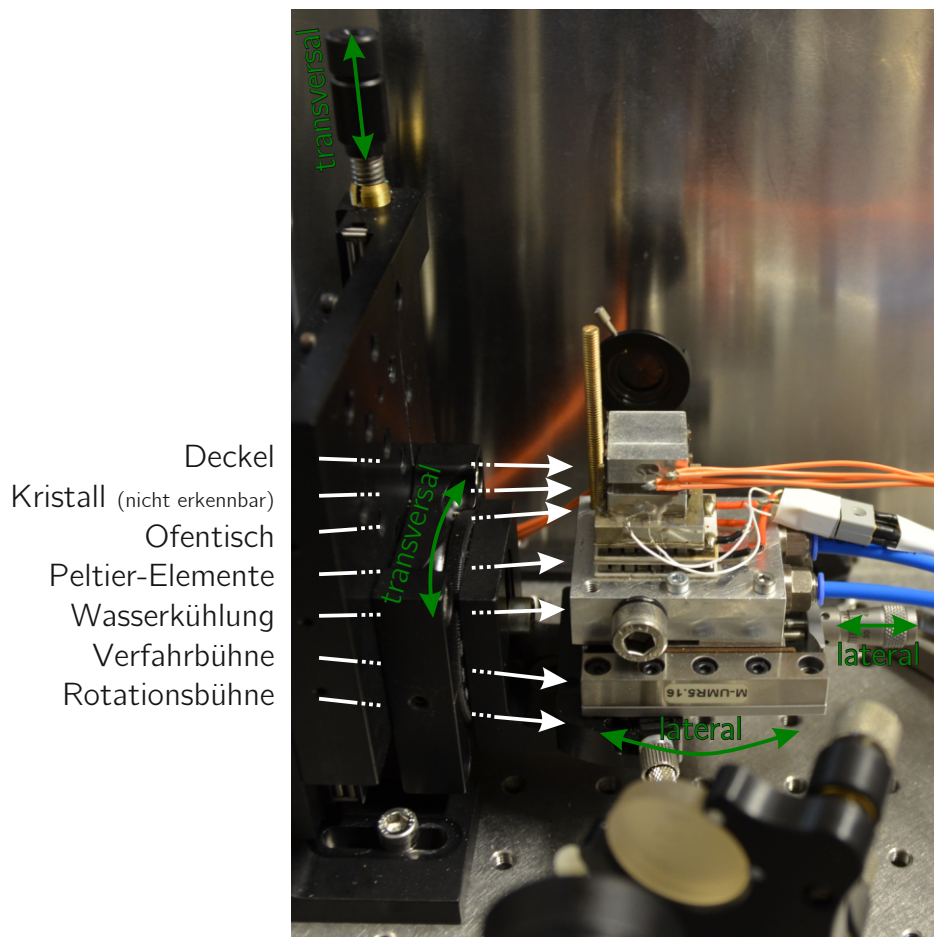


Abbildung 6: Ofen mit Halterung

Der Kristall selbst ist zwischen Ofentisch und Deckel nicht zu erkennen. Der Strahl kommt im Bild von unten und verläuft knapp links neben dem unscharf zu erkennenden Spiegel entlang auf den Kristall, von dem Vorder- und Rückreflex auf ebendiesen Spiegel reflektiert werden. In grün dargestellt sind die beiden Translations- und Rotationsrichtungen der Halterung

Das Herzstück des Messaufbaus ist der zu vermessende Kristall samt Halterung. Er befindet sich in einem Ofen, mit dem er im Temperaturbereich von $0\text{ }^{\circ}\text{C}$ bis etwa $220\text{ }^{\circ}\text{C}$ aktiv geheizt oder gekühlt werden kann. Dieser besteht aus einer Grundplatte mit Wasserkühlung als quasi unendliches Wärmereservoir, zwei in Reihe geschalteten Peltier-Elementen und einem Ofentisch aus Aluminium mit etwa 2 cm^2 Grundfläche. Die Elemente sind in genannter Reihenfolge gestapelt und mit thermisch leitfähigem Klebstoff fest verbunden. Auf dem Tisch des Ofens liegt der zu vermessende Kristall und über ihm ein Aluminiumdeckel (vgl. Abbildung 6). Der Kristall wird dabei immer so platziert, dass seine optische Achse (bis auf evt. den Winkel ε in Abbildung 3) senkrecht zum Laserstrahl steht. Um einen guten thermischen Kontakt zum Kristall zu gewährleisten, ist der Deckel unter leichtem Druck mit Kupferblechstücken mit dem Tisch des Ofens verschraubt. Hierbei muss ein Kompromiss zwischen einer möglichst von mechanischen Spannungen freien Montage des Kristalls zur Vermeidung eines elastooptischen Effekts und einem guten thermischen Kontakt mit Deckel und Ofentisch gefunden werden. Da Lithiumniobat und Kupfer jedoch in etwa den gleichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten aufweisen (vgl. [Wong, 2002, S. 76] und [Kalvius u. a., 2005, S. 341]), sollten die durch Erwärmung auftretenden Spannungen nicht nennenswert sein.

In Tisch und Deckel des Ofens sind jeweils mit identischem Abstand zum Kristall ein Platinmesswiderstand (PT1000, Toleranzklasse B der Firma *Jumo*) als Temperaturfühler thermisch leitend eingeklebt. Ihr Widerstandswert wird jeweils mit einem *Keithley Multimeter 2000* mithilfe einer Vierdrahtschaltung mit einer Genauigkeit von $\pm 1\text{ m}\Omega$ [vgl. Keithley, 2014, S. 3] gemessen und über eine digitale Schnittstelle direkt vom Messcomputer ausgelesen. Mit der vom Hersteller angegebenen quadratischen Gleichung kann der Widerstandswert in eine Temperatur umgerechnet werden [vgl. JUMO, 2014, S. 2]. Die angegebene Toleranzklasse bezieht sich dabei auf produktionsbedingte Schwankungen des Nennwiderstandswerts einer Fertigungsserie (hier 1000Ω bei $0\text{ }^{\circ}\text{C}$). Diese begrenzt die Genauigkeit einer absoluten Temperaturmessung. Für Temperaturdifferenzmessungen ist hingegen die Reproduzierbarkeit eines Messwertes mit demselben Messwiderstand entscheidend. Hierfür konnte eine Auflösung von $\pm 5\text{ mK}$ erreicht werden.

Da die Wärmequelle bzw. -senke unterhalb des Ofentischs angebracht ist, lässt sich ein Temperaturgradient zwischen Tisch und Deckel und damit auch im Kristall bei höheren Temperaturen nicht verhindern. Zur Abschätzung der Kristalltemperatur am Ort des Laserstrahls wird daher der Mittelwert zwischen Ofentisch- und Deckeltem-

peraturen verwendet. Über den Ofen ist außerdem eine Haube mit lediglich einer Strahlaustrittsöffnung als Schutz gegen Luftzüge und damit für eine stabilere Kristalltemperatur gestülpt.

Die Peltier-Elemente sowie ein weiterer, baugleicher, in den Ofentisch eingeklebter Platinmesswiderstand sind an eine Temperatursteuerung mit integriertem PID-Regler angeschlossen. Diese ist eine Eigenentwicklung der Gruppe *optische Systeme* am Institut für Mikrosystemtechnik der Universität Freiburg. Sie eignet sich gut für die schnelle und schwankungsarme Stabilisierung einer Soll-Temperatur, allerdings nicht auf eine Absoluttemperatur, da ihre interne Temperaturmessung schlecht kalibriert ist. Die tatsächlich stabilisierte Temperatur weicht daher mit der Temperatur steigend um bis zu 3 K von der vorgegebenen Soll-Temperatur ab. Da für die Auswertung ausschließlich die über die Keithley-Multimeter ermittelten, tatsächlichen Temperaturen verwendet werden, beeinträchtigt dieser Umstand die Messungen nicht weiter. Einige frühe Messungen wurden allerdings ohne Keithley-Multimeter durchgeführt. Die Temperatur einer solchen Messung werde ich mit einem * Kennzeichnen, um anzuzeigen, dass sie nicht der wahren Temperatur entspricht und nur als Anhaltspunkt zu verstehen ist. Bei diesen Messungen kann zudem keine Kristalltemperatur abgeschätzt werden, da die Temperatur des Deckels unbekannt ist.

Der gesamte Ofen ist so gelagert, dass er sowohl lateral als auch transversal zum Laserstrahl translatiert und rotiert werden kann (vgl. dazu die grün markierten Bewegungsrichtungen in Abbildung 6). Die laterale Verkipfung ist notwendig, um den in Abschnitt 3.1 bereits beschriebenen kleinen Winkel zwischen Laserstrahl und Kristallfläche zu ermöglichen. Die transversale Rotation dient dazu, eine Ablenkung der reflektierten Strahlen aus der Waagerechten bei Kristallen mit nicht planparalleler Vorder- und Rückseite zu kompensieren. Mithilfe der transversalen Translation können Kristalle verschiedener Dicke so positioniert werden, dass der Laserstrahl mittig auf sie trifft. Die laterale Translation schlussendlich ist dazu gedacht, eventuell vorhandenen zerkratzten Stellen auf dem Kristall auszuweichen.

Vorder- und Rückreflex liegen in der Regel schon so dicht beieinander, dass sie ohne weiteres Zutun in ihren Randbereichen interferieren. Die in Abbildung 4 gezeigte Zerstreuungslinse dient dann lediglich der Aufweitung des Interferenzstreifenmusters. Um die Qualität desselben zu erhöhen, können beide Teilstrahlen jedoch auch zunächst fokussiert und dadurch besser überlagert werden. Die Aufweitung durch die

Zerstreuungslinse erfolgt dann kurz vor dem Fokuspunkt. Das so erhaltene Interferenzstreifenmuster trifft am Ende des Strahlenganges auf die mit einer Lochblende abgeschirmte Signaldiode (vgl. Abbildung 7). Die Lochblende dient als der in Abschnitt 3.1 eingeführte *ortsfeste Punkt*. Ihr Durchmesser ist so gewählt, dass er kleiner als die Breite eines Interferenzstreifens ist. Hierbei gilt: Je kleiner der Durchmesser der Lochblende, desto größer ist die Modulationstiefe des Messsignals bei Temperaturänderung, desto geringer allerdings auch die Amplitude.



Abbildung 7: Interferenzmuster

Mit Lochblende abgeschirmte Signalphotodiode und Interferenzstreifenmuster bei 591 nm. Die Öffnung der Lochblende ist als kleiner schwarzer Punkt in der Mitte des Interferenzmusters gut zu erkennen. Bei Änderung der Kristalltemperatur bleibt die vom Interferenzmuster ausgeleuchtete Fläche als ganzes ortsfest, nur die Stellen konstruktiver bzw. destruktiver Interferenz verschieben sich orthogonal zu den Interferenzstreifen, was den Eindruck des „Wanderns“ des Interferenzmusters erzeugt

Als Signal- und Referenzdiode werden zwei Silicium-Photodioden des Typs *OSD60-5T* der Firma *Centronic* verwendet. Sie sind sowohl für den sichtbaren wie auch den nahinfraroten Spektralbereich geeignet und haben ihre maximale Empfindlichkeit bei 800 nm [vgl. Centronic, 2013]. Bei den blauen Wellenlängen im sichtbaren sowie den infraroten Wellenlängen über 1000 nm nimmt ihre Empfindlichkeit jedoch bereits deutlich ab. Ihr Signal wird über einen Photodiodenverstärker an einen Analog-Digital-Wandler geleitet, um vom Messcomputer erfasst werden zu können. Softwareseitig wird die Signaldiodespannung anschließend durch die Referenzdiodenspannung geteilt, um einen von Schwankungen der Laserleistungen unabhängigen Messwert zu erhalten. Dieser hat willkürliche Einheiten (engl. *arbitrary units*) und ist daher nicht mit dem Wert einer unter anderen Bedingungen durchgeführten Messung vergleichbar. Er soll im Folgenden als *normiertes Signal* bezeichnet werden.

Neben der Messdatenaufnahme erfolgt auch die Messdurchführung automatisiert mithilfe des Laborprogramms *LabView*. Angesteuert werden können dafür die Drehung des Polarisators sowie die Temperatursteuerungen für die Regelung der Kristalltemperatur des OPO-Kristalls und des zu vermessenden Kristalls.

3.5 Messmodi und Auswertemethoden

Die in Abschnitt 3.1 vorgestellte Intensitätsschwankung am Ort der Lochblende hat bei gleichmäßiger Änderung der Kristalltemperatur einen mit der Zeit sinusförmigen Verlauf. Trägt man die normierte Photodiodenspannung nicht gegen die Zeit, sondern gegen die Kristalltemperatur auf, so ist der Verlauf auch bei nicht gleichmäßigem Temperaturverlauf sinusförmig:

(a)

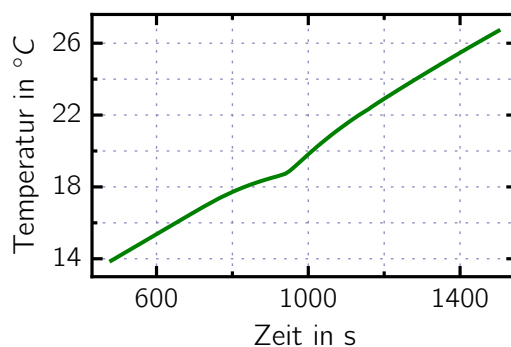


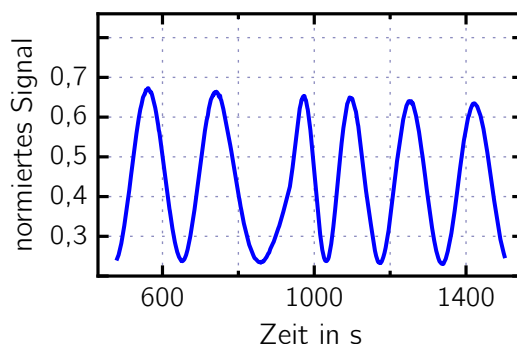
Abbildung 8: typische Messgraphen

Ausschnitt einer Messung an eisendotiertem Lithiumniobat in außerordentlicher Polarisation bei 910 nm.

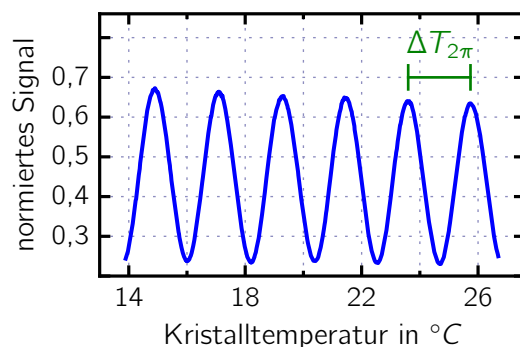
(a) und (b) zeigen den zeitlichen Verlauf der Kristalltemperatur bzw. des normierten Signals.

(c) zeigt dasselbe normierte Signal, jedoch über die Kristalltemperatur aufgetragen. Aus diesem Graph lässt sich die Messgröße $\Delta T_{2\pi}$ wie eingezeichnet ermitteln

(b)



(c)



Die Periodenlänge des temperaturabhängigen Sinus' in Abbildung 8 (c) ist die im Experiment zu ermittelnde Messgröße $\Delta T_{2\pi}$. Da zur Ermittlung der Periodenlänge eines Sinus' die Skalierung der Amplitude irrelevant ist, ist es unproblematisch, dass das normierte Signal in beliebiger Einheit angegeben ist.

Der in Abbildung 8 (c) dargestellte Graph ist allerdings kein perfekter Sinus, da sowohl der thermooptische Koeffizient als auch der thermische Ausdehnungskoeffizient

sich mit der Temperatur ändern. Die Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ wird dadurch temperaturabhängig und man erhält einen entlang der Abszisse leicht verzerrten Sinus. Über große Temperaturbereiche wird dies sichtbar.

Für die Bestimmung der Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ möchte ich nun zwei verschiedene Messmodi vorstellen.

3.5.1 Gleichgewichtsmodus

Im Gleichgewichtsmodus wird die Kristalltemperatur kleinschrittig und symmetrisch um die Stütztemperatur T_S , an der der thermooptische Koeffizient ermittelt werden soll, variiert. Dabei wird vor jeder Aufnahme eines Messpunktes abgewartet, bis sich im zu vermessenden Kristall ein thermisches Gleichgewicht eingestellt hat. Als Indikator dafür dient die Temperatur im Deckel des Ofens. Anschließend werden das normierte Signal und die Kristalltemperatur über eine Integrationszeit von 30 s gemittelt erfasst. Außerdem werden die Messsignale mit der Zeit kontinuierlich aufgezeichnet. Dieser Verlauf gibt Aufschluss über das Verhalten während des Temperaturänderungsprozesses.

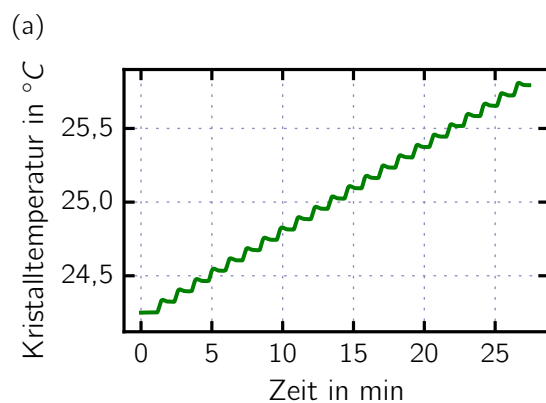
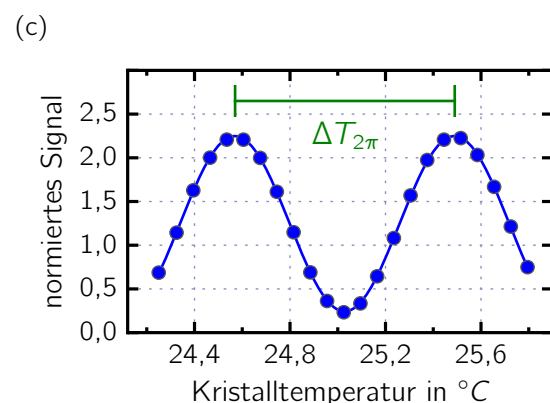
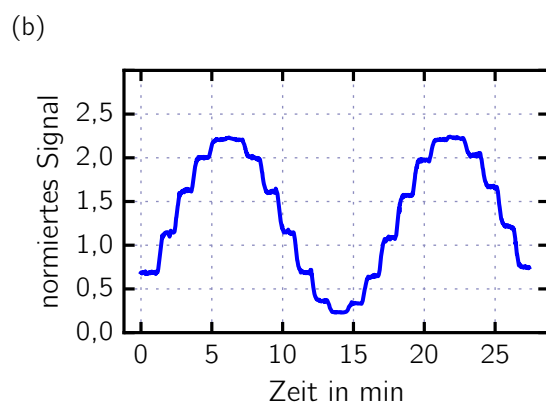


Abbildung 9: Gleichgewichtsmodus

zeitlicher Verlauf der Kristalltemperatur (a) und des normierten Signals (b) sowie Messpunkte und Sinusfit (c) einer Gleichgewichtsmessung an magnesiumdotiertem Lithiumniobat in ordentlicher Polarisation bei 632,8 nm um die Stütztemperatur 25 °C mit einer Schrittweite von 70 mK im lokalen Messintervall 24,25 °C bis 25,75 °C. Mithilfe des Sinusfits in (c) wird $\Delta T_{2\pi}$ ermittelt



Das lokale Messintervall sollte so gewählt werden, dass mehr als eine Periode des in Abbildung 9 (c) dargestellten Sinus abgedeckt ist und die Schrittweite zwischen den einzelnen Messpunkten so, dass man 20 bis 30 Messpunkte erhält. Mithilfe eines Sinusfits an diese Messpunkte lässt sich die Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ leicht ermitteln.

Mehrere Messungen im Gleichgewichtsmodus lassen sich gut zu einer Messreihe zusammenfassen und automatisiert durchführen.⁸ In den Messreihen dieser Arbeit wurden Wellenlänge und Polarisierung konstant gehalten und die Stütztemperatur innerhalb des globalen Messintervalls schrittweise variiert. Zum Teil wurde zudem das lokale Messintervall bei jeder Stütztemperatur direkt nacheinander heizend und kühlend durchlaufen, da sich bei der Durchführung der Messungen herausgestellt hat, dass sich die Ergebnisse unterscheiden. Zwischen zwei Messungen mit verschiedener Stütztemperatur ist außerdem eine längere Wartezeit nötig, um Drifteffekte abklingen zu lassen (vgl. Abschnitt 5.3).

Nachteilig an dieser Messmethode ist ihre Anfälligkeit für Modensprünge des OPOs. Die mit ihm einhergehende, kleine Wellenlängenänderung hat nämlich eine sofortige Verschiebung des Interferenzmusters vor der Lochblende zur Folge. Dies führt zu einer Unstetigkeit im eigentlich sinusförmigen Verlauf der Messpunkte (vgl. Abbildung 10). Daher sollte eine Gleichgewichtsmessung bei Auftreten eines Modensprungs wiederholt oder nur die Messpunkte vor bzw. nach dem Modensprung für den Sinusfit verwendet werden – einen brauchbaren Fit erhält man allerdings erst, wenn zwei Extrema abgedeckt werden. Die geringe Änderung der Wellenlänge kann bei der Berechnung des thermooptischen Koeffizienten aus der Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ nach Gleichung (IX) dafür vernachlässigt werden.

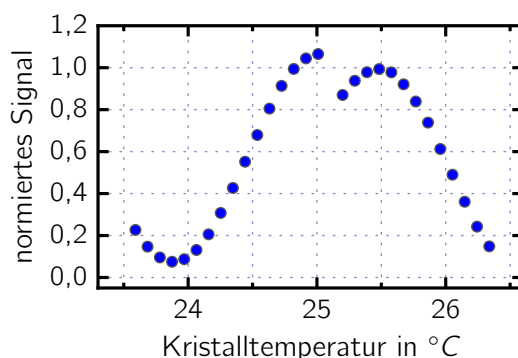


Abbildung 10: Modensprung

Messpunkte einer Gleichgewichtsmessung um die Stütztemperatur 25 °C an kongruentem Lithiumniobat in außerordentlicher Polarisierung bei 1256 nm. Die durch einen Modensprung des OPOs bei 25 °C verursachte Unstetigkeit im Verlauf der Messpunkte ist deutlich zu erkennen

⁸ Zur sprachlichen Trennung bezeichne ich die Parameter einer Messung der Messreihe als *lokal* und diejenigen der gesamten Messreihe als *global*.

3.5.2 Rampenmodus

Anstatt ein thermisches Gleichgewicht abzuwarten, wird die Kristalltemperatur im Rampenmodus langsam und gleichmäßig geändert („eine Rampe gefahren“). Eine Änderungsgeschwindigkeit von 14 mK/s hat sich dabei als zielführend herausgestellt. Diese Temperaturänderung ist so langsam, dass man sie als quasi-statisch betrachten kann. Während der gesamten Zeit werden das normierte Signal und die Kristalltemperatur kontinuierlich aufgezeichnet. Trägt man sie gegeneinander auf, erhält man den eingangs beschriebenen, mit der Temperatur leicht verzerrten Sinus:

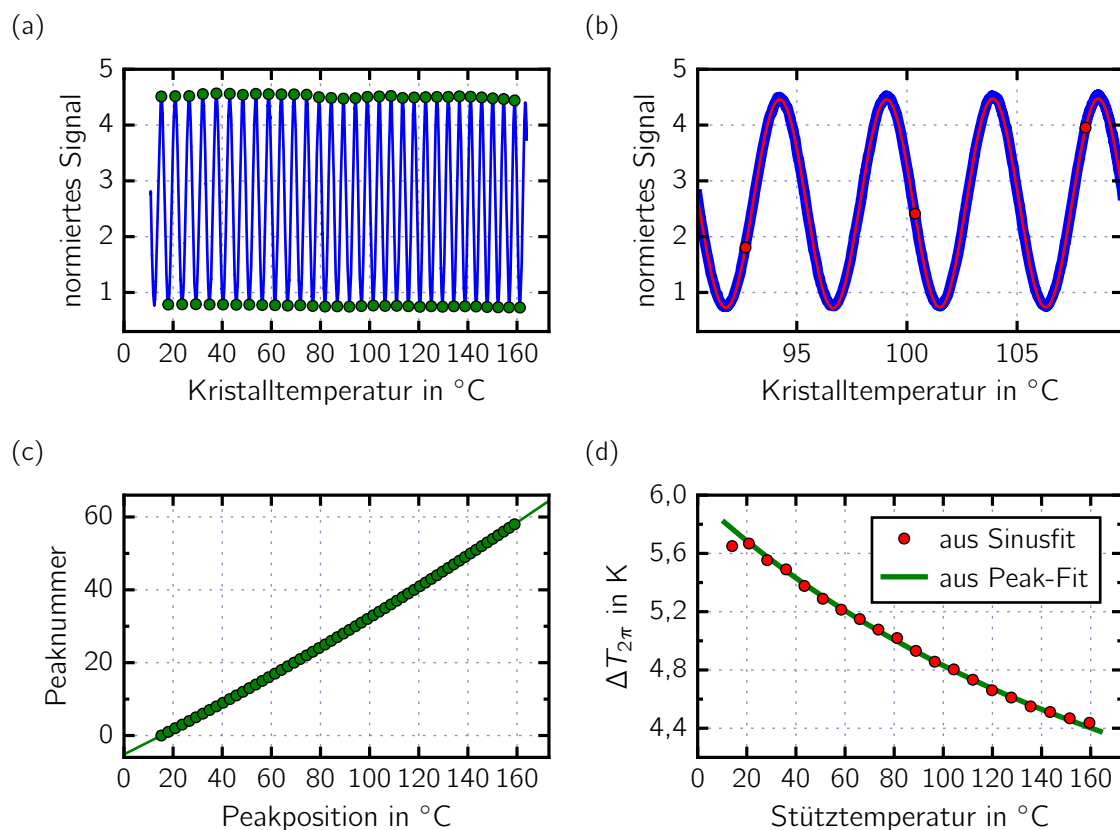


Abbildung 11: Auswertemethoden im Rampenmodus

Im Rampenmodus in heizende Richtung durchgeführte Messung der Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ an einer kongruenten Lithiumniobatprobe bei 1130 nm in ordentlicher Polarisation.

Auswertung über Peakpositionen:

(a) normiertes Signal (Linie, blau) und Peakpositionen (Kreise, grün). Die langsame Änderung der Periodenlänge des Sinus ist kaum zu erkennen. Minima und Maxima werden mit steigender Temperatur gemeinsam durchnummeriert und die Peaknummern gegen die Peakpositionen aufgetragen (vgl. (c)). Aufgrund der sich leicht ändernden Periodenlänge ist der Graph in (c) keine Gerade. Die durchgezogene Linie ist ein Polynomfit 3. Grades. In (d) ist die Ableitung des Polynomfits gemäß Gleichung (XI) in eine Periodenlänge umgerechnet in grün dargestellt.

Auswertung über abschnittsweise Sinusfits:

(b) zeigt einen Ausschnitt des normierten Signals aus (a) und beispielhaft zwei abschnittsweise Sinusfits. Die so ermittelten Periodenlängen sind in (d) als rote Punkte dargestellt

Um die Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ dieses Sinus und seine Änderung mit der Temperatur zu ermitteln, habe ich zwei Auswertemethoden entwickelt. In der ersten wird der in Abbildung 11 (a) dargestellte Graph in Abschnitte eingeteilt und an jedem Abschnitt analog zur Auswertung der Gleichgewichtsmethode ein Sinusfit durchgeführt (vgl. Abbildung 11 (b)). Da sich die Periodenlänge nur langsam ändert, sind die abschnittswisen Fits sehr gut. Jeweils der Mittelwert des Abschnittsintervalls wird der Periodenlänge als Stütztemperatur zugeordnet. Der Vorteil dieser Methode ist, dass aufgrund der abschnittswisen Auswertung Anomalien im Verlauf der in Abbildung 11 (d) dargestellten Periodenlänge immer sichtbar sind.

In der zweiten Auswertemethode werden stattdessen die Positionen der Minima und Maxima des verzerrten Sinus' mithilfe eines „Peakfindeskripts“ bestimmt und anschließend gemeinsam mit aufsteigender Temperatur durchnummeriert. Trägt man die Peaknummern über die Peakpositionen auf und legt ein Polynom durch diese Punkte (vgl. Abbildung 11 (c)), so ist die Ableitung dieses Polynoms das infinitesimale Pendant zum Kehrwert der halben Periodenlänge. Ein Polynom 3. Grades hat sich dafür im Normalfall als ausreichend erwiesen. Die Verknüpfung zur Messgleichung (IX) wird über folgende Beziehung hergestellt:

$$\frac{d(\text{Peaknummer})}{dT} = \frac{2}{\Delta T_{2\pi}} \quad (\text{XI})$$

Die so ermittelte Periodenlänge ist in Abbildung 11 (d) grün dargestellt. Erst in diesem Graph wird deutlich sichtbar, dass sich die Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ mit der Stütztemperatur ändert.

Diese Auswertemethode lässt zudem eine einfach durchzuführende Modensprungkorrektur zu: Tritt ein Modensprung auf, weicht der Abstand der beiden Extrema vor und nach dem Modensprung mitunter stark vom eigentlichen Wert ohne Modensprung ab. Dies äußert sich im *Peaknummern über Peakpositionen*-Graph in einem Sprung, der den Polynomfit verfälscht (vgl. Abbildung 12 (b)). Dieser Sprung kann in erster Näherung korrigiert werden, indem der prozentuale Wert, um den der verfälschte Peakabstand größer oder kleiner als der vorherige, unverfälschte Peakabstand ist, zu allen nachfolgenden Peaknummern addiert bzw. von ihnen subtrahiert wird (vgl. Abbildung 12 (a)). Dabei wird angenommen, der wahre Wert des verfälschten Peakabstands entspreche gerade dem vorherigen Peakabstand. Seine Änderung aufgrund der Änderung der optischen Weglänge bleibt also unberücksichtigt (schließlich ist sie nicht bekannt). Die Korrektur ist daher nicht perfekt, aber gut genug, um die Messung trotz eines Modensprunges auswerten zu können (vgl. Abbildung 12 (c)).

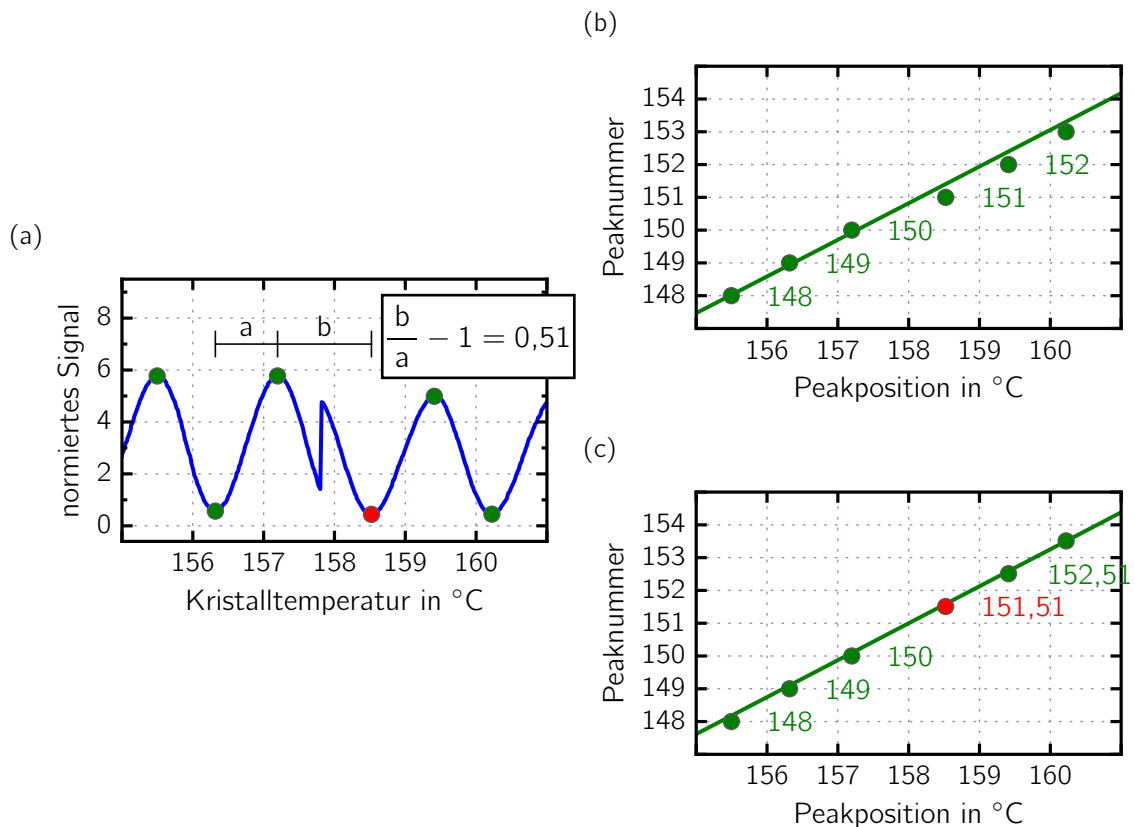


Abbildung 12: Modensprungkorrektur

(a) Ausschnitt einer Messung an kongruentem Lithiumniobat, durchgeführt im Rampenmodus bei 565 nm, o-pol. Bei etwa 158 °C tritt ein Modensprung auf. Der Peakabstand b ist dadurch um 51% größer als der Peakabstand a . Daher werden ab dem rot markierten Peak alle Peaknummer um +0,51 korrigiert⁹

(b) Peakpositionen mit unkorrigierten Peaknummern und Polynomfit

(c) Peakpositionen mit korrigierten Peaknummern und Polynomfit. Der Fit ist deutlich besser

Für die Endauswertung wird in dieser Arbeit die Auswertung über Peakpositionen verwendet. Ihr Ergebnis wurde jedoch immer mit dem der Auswertung über abschnittsweise Sinusfits verglichen, um die korrekte Einstellung der Auswerteparameter (Grad des Polynomfits, Schwelle der Modensprungkorrektur) zu überprüfen.

⁹ Die Änderung der normierten Signalamplitude beim Modensprung führe ich darauf zurück, dass sich durch einen Modensprung auch das Strahlprofil verschieben oder ändern kann. Da die Signaldiode aufgrund der Abschirmung durch die Lochblende nur einen Teil des aufgeweiteten Strahls erfasst, misst sie dann an einer anderen Stelle des Strahlprofils, an der aufgrund der in etwa gaußförmigen Einhüllenden des Intensitätsmusters eine andere maximale Intensität vorliegen kann. Die Referenzdiode erfasst hingegen immer den gesamten Strahl und sollte daher auf die Änderung der normierten Signalamplitude keinen Einfluss haben.

4 Proben

In dieser Arbeit werden vier verschiedene Lithiumniobatproben untersucht. Eine stöchiometrische *SLN*, eine kongruente *CLN* sowie zwei kongruent dotierte. Davon ist eine mit 0,03 Gew.-% Eisen (*Fe:CLN*), die andere mit 5 mol% Magnesiumoxid (*MgO:CLN*) dotiert. Alle sind entlang der x-, y- und z-Achse in Quader geschnitten (vgl. die Abmaße in Tabelle 2). Für die interferometrische Messung werden jeweils die y-Seitenflächen genutzt. Diese sind daher facettiert.

	SLN	CLN	MgO:CLN	Fe:CLN
x in mm	2	10	10	10
y in mm	8,61 ± 0,01	2,90 ± 0,01	9,42 ± 0,01	3,19 ± 0,01
z in mm	10	3	1	3
Kristalltyp	stöchiometrisch	kongruent	kongruent	kongruent
Dotierung	-	-	5 mol% MgO	0,03 Gew.-% Fe

Tabelle 2: Lithiumniobatproben

Eigenschaften der vier in dieser Arbeit verwendeten Lithiumniobatproben. Die y-Achse verläuft entlang des Laserstrahls. Daher entspricht die Länge der y-Achse der Kristalllänge $d(T_0)$ in Gleichung (X). Das Ausmaß der Probe orthogonal zum Labortisch (Dicke) ist fett gedruckt. Die Polarität der Achsen wurde nicht bestimmt

Die Proben werden jeweils flach auf den Ofentisch gelegt. Das bedeutet, dass die optische Achse für *SLN* parallel zur Labortischebene und für die anderen drei Kristalle senkrecht zur Labortischebene sowie (bis auf den in Abbildung 3 gezeigten Winkel ε im Falle von *SLN*) orthogonal zum einfallenden Strahl steht. So kann durch den Wechsel zwischen waagrecht zum Labortisch und senkrecht zum Labortisch polarisiertem Laserlicht in ordentlicher und außerordentlicher Polarisation gemessen werden.

Alle vier Proben sind auf den x- und z-Seitenflächen mit einem circa 100 nm dicken Goldfilm besputtert. Dies hat zum Ziel, die z-Seitenflächen der Kristalle elektrisch leitend kurzzuschließen, sodass aufgrund des pyroelektrischen Effekts entstehende Oberflächenladungen sofort ausgeglichen werden. Somit kann kein pyroelektrisch induziertes elektrisches Feld entstehen und eine nachfolgende Brechungsindexänderung aufgrund des linear elektrooptischen Effekts wird verhindert.

Da die Literaturangaben des thermischen Ausdehnungskoeffizienten zum Teil stark variieren (vgl. Abschnitt 3.2), wurde er für diese Arbeit an der kongruenten, undo-

tierten Probe *CLN* von der Gruppe BOHATÝS am Lehrstuhl für Kristallographie in Köln neu vermessen. Für die beiden Achsen orthogonal zur z-Achse wurde folgender Ausdehnungskoeffizient ermittelt:

$$\alpha_{CLN,\perp z}(T) = (15,13 \pm 0,05) \cdot 10^{-6}/K + (15,0 \pm 1,8) \cdot 10^{-9}/K^2 \cdot (T - 300 K) \quad (\text{XII})$$

Die Temperatur T wird hierbei in Kelvin angegeben. Da sich der thermische Ausdehnungskoeffizient von Lithiumniobat orthogonal zur z-Achse für verschiedene Stöchiometrien nicht unterscheidet, kann diese Beziehung auch für die Probe *SLN* verwendet werden [vgl. Wong, 2002, S. 77]. Es soll zudem davon ausgegangen werden, dass sie auch für die kongruent dotierten Proben *MgO:CLN* und *Fe:CLN* gilt. Diese Annahme ist in der Literatur gängige Praxis (vgl. beispielsweise [Jensen u. a., 2009] oder [Peithmann u. a., 2000]).

Die Dispersion und Temperaturabhängigkeit des absoluten Brechungsindex von kongruentem Lithiumniobat wird im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich durch die Sellmeiergleichung nach EDWARDS et. al. [Edwards u. a., 1984] für ordentliche und außerordentliche Polarisation gut wiedergegeben:

$$n^2(\lambda, T) = A_1 + \frac{A_2 + B_1 \cdot F(T)}{\lambda^2 - (A_3 + B_2 \cdot F(T))^2} + B_3 \cdot F(T) - A_4 \cdot \lambda^2 \quad (\text{XIII.a})$$

wobei die Temperaturabhängigkeit durch folgende Form bestimmt wird:

$$F(T) = (T - T_0) \cdot (T + T_0 + C_1) \quad (\text{XIII.b})$$

In Ermangelung einer Sellmeiergleichung speziell für eisendotiertes Lithiumniobat werde ich die Koeffizienten nach EDWARDS et. al. für kongruentes Lithiumniobat auch für die Probe *Fe:CLN* verwendet. Für mit Magnesiumoxid dotiertes, kongruentes Lithiumniobat habe ich aus temperatur- und wellenlängenabhängigen Messungen des Brechungsindex von SHEN et. al. [Shen u. a., 1992] über eine Anpassung an Gleichung (XIII) selbst die Koeffizienten einer passenden Sellmeiergleichung bestimmt. Für die stöchiometrische Probe verwende ich schlussendlich Koeffizienten nach JUNDT et. al. [Jundt u. a., 1990]. Sie sind gemeinsam in Tabelle 3 angegeben.

Der Großteil der Messungen dieser Arbeit wird an der undotierten, kongruenten Probe *CLN* durchgeführt (vgl. Abschnitt 5.6). In jedem Zweig des OPOs sollen zudem bei je einer Wellenlänge alle vier Proben vermessen werden (vgl. Abschnitt 5.7).

(a) o-pol

	CLN (und Fe:CLN)	MgO:CLN	SLN
A ₁	4,9048	4,8828 ± 0,0019	4,913 ± 0,006
A ₂	0,11775	0,1127 ± 0,0012	(1,163 ± 0,013)·10 ⁵
A ₃	0,21802	0,228 ± 0,004	(2,201 ± 0,015)·10 ²
A ₄	0,027153	0,0284 ± 0,0008	(2,73 ± 0,44)·10 ⁻⁸
B ₁	2,2314·10 ⁻⁸	(1,4 ± 1,2)·10 ⁻⁸	(9,4 ± 2,9)·10 ⁻³
B ₂	-2,9671·10 ⁻⁸	(3,0 ± 4,8)·10 ⁻⁸	(3,98 ± 0,30)·10 ⁻⁵
B ₃	2,1429·10 ⁻⁸	(2,2 ± 0,9)·10 ⁻⁸	(1,6 ± 0,72)·10 ⁻⁸

(b) e-pol

	CLN (und Fe:CLN)	MgO:CLN	SLN
A ₁	4,582	4,5436 ± 0,0022	4,546 ± 0,007
A ₂	0,09921	0,0951 ± 0,0014	(9,17 ± 0,16)·10 ⁴
A ₃	0,2109	0,216 ± 0,006	(2,148 ± 0,025)·10 ²
A ₄	0,02194	0,0221 ± 0,0009	(3,03 ± 0,59)·10 ⁻⁸
B ₁	5,2716·10 ⁻⁸	(3,3 ± 1,4)·10 ⁻⁸	(1,93 ± 0,55)·10 ⁻²
B ₂	-4,9143·10 ⁻⁸	(3,0 ± 7,0)·10 ⁻⁸	(5,3 ± 0,77)·10 ⁻⁵
B ₃	2,2971·10 ⁻⁷	(2,93 ± 0,11)·10 ⁻⁷	(2,72 ± 0,15)·10 ⁻⁷

(c) o-pol und e-pol

	CLN (und Fe:CLN)	MgO:CLN	SLN
T ₀ in °C	24,5	20	24,5
C ₁ in °C	546	2 · 273,15	546
[λ]	μm	μm	nm
[T]	°C	°C	°C
Gültigkeitsbereich	400 nm - 3 μm 20 °C - 600 °C	540 nm - 1,341 μm 20 °C - 154,5 °C	325 nm - 1064 nm 0 °C - 400 °C
Quelle	[Edwards u. a., 1984] [Nelson, 1974] [Smith u. a., 1976]	[Shen u. a., 1992]	[Jundt u. a., 1990]

Tabelle 3: Koeffizienten der Sellmeiergleichung (XIII) ¹⁰

für (a) ordentliche bzw. (b) außerordentliche Polarisierung der vier in dieser Arbeit untersuchten Lithiumniobatproben. Die erste und dritte Spalte sind jeweils Literaturwerte, die Koeffizienten für MgO:CLN habe ich mithilfe einer Anpassung der Sellmeiergleichung (XIII) an Messdaten von SHEN et. al. selbst ermittelt. Man beachte, dass die Wellenlänge je nach verwendetem Satz an Koeffizienten in einer anderen Einheit angegeben werden muss

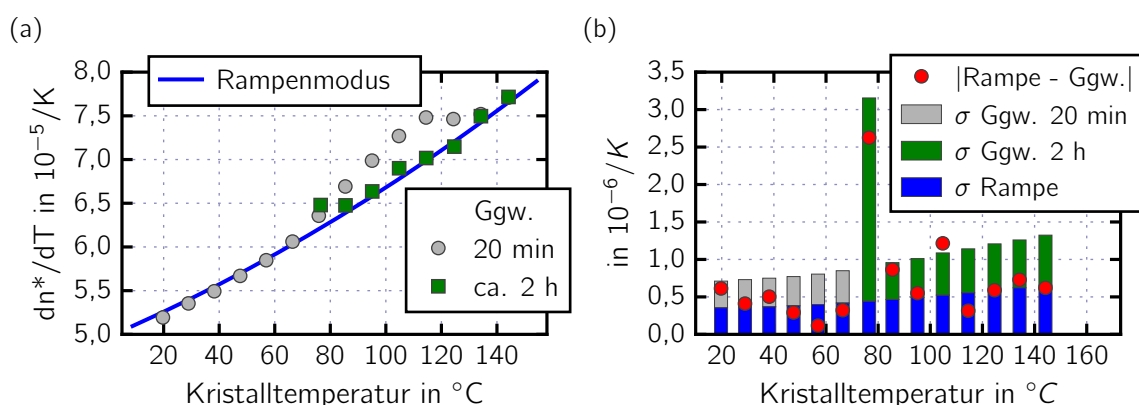
¹⁰ Die Koeffizienten der Sellmeiergleichung in dieser Form sind einheitenbehaftet. In der Literatur ist es jedoch üblich, sie einheitenlos anzugeben und dafür auf die Notwendigkeit der Verwendung bestimmter Einheiten für die Variablen der Gleichung hinzuweisen.

5 Messergebnisse und Diskussion

Bevor ich zur Vorstellung und Diskussion der Messung des thermooptischen Koeffizienten selbst komme, möchte ich einige Beobachtungen, die für das Verständnis der Messmethoden sowie die Bewertung der Messergebnisse wichtig sind, präsentieren.

Der thermooptische Koeffizient wurde im Folgenden immer nach Gleichung (IX) aus den gemessenen Periodenlängen $\Delta T_{2\pi}$ und den in Kapitel 4 angegebenen Zahlenwerten berechnet. Es besteht jedoch die Möglichkeit, dass die Periodenlänge systematischen Fehlern unterliegt. Dann entspricht der berechnete thermooptische Koeffizient nicht dem wahren Wert. Solange diese Frage noch ungeklärt ist, werde ich daher vom *potentiell verfälschten thermooptischen Koeffizienten* dn^*/dT sprechen.

5.1 Vergleich der Messmodi



Messung	Probe	λ	Polarisation	globales Messintervall ¹¹	
●	CLN	574 nm	e-pol	$20\text{ }^{\circ}\text{C} \xleftarrow[1200\text{ s}]{-10\text{ K}} 150\text{ }^{\circ}\text{C}$	lokal kühlend
■	CLN	574 nm	e-pol	$80\text{ }^{\circ}\text{C} \xleftarrow[>7200\text{ s}]{-10\text{ K}} 150\text{ }^{\circ}\text{C}$	lokal kühlend
—	CLN	574 nm	e-pol	$10\text{ }^{\circ}\text{C} \xleftarrow{-14\text{ mK/s}} 160\text{ }^{\circ}\text{C}$	Auswertung über Peakpositionen

Abbildung 13: Vergleich von Rampen- und Gleichgewichtsmodus

(a) (*potentiell verfälschter*) thermooptischer Koeffizient. Im Gleichgewichtsmodus beträgt die Wartezeit zwischen zwei Messungen an verschiedenen Stütztemperaturen 20 min (Kreise, grau) bzw. mehr als 2 h (Quadrate, grün)

(b) Betrag der Differenz der thermooptischen Koeffizienten (Kreise, rot) und Summe der Standardfehler ¹² (Balken, blau-grau / blau-grün) von Rampen- und Gleichgewichtsmessung an der jeweiligen Stütztemperatur. Liegen zwei Gleichgewichtsmessungen vor, wurde diejenige mit der bessern Übereinstimmung zur Rampenmessung verwendet ¹³

Zu Beginn möchte ich überprüfen, ob mit beiden Messmodi das Gleiche gemessen wird. Drei Vergleichsmessungen dazu sind in Abbildung 13 dargestellt.

Die Gleichgewichtsmessreihe mit lediglich 20 Minuten Wartezeit nach Änderung der Stütztemperatur und vor Start der nächsten Messung (grau) weicht um 100°C weiträumig von den Werten des Rampenmodus ab (vgl. dazu Abschnitt 5.3). Erst, wenn man die Wartezeit auf mindestens 2 Stunden erhöht (grün), gleichen sich die Ergebnisse beider Messmethoden im Rahmen der Messgenauigkeit bis auf eine Ausnahme im gesamten Temperaturbereich (vgl. Abbildung 13 (b)).

Diskussion

Dies zeigt exemplarisch, dass die Messergebnisse von Rampen- und Gleichgewichtsmodus bei geeigneter Durchführung gleichwertig sind. Beide Messmodi können demnach gleichermaßen verwendet werden.

Zur Durchführung der in Abschnitt 5.6 und 5.7 vorgestellten Messungen habe ich mich für den Rampenmodus entschieden. Dies hat mehrere Gründe. Zum einen ist er weniger anfällig gegenüber Modensprünge (vgl. Abschnitt 3.5). Außerdem vermisst er das globale Temperaturintervall vollständig, das heißt nicht nur um ausgewählte Stütztemperaturen, wie der Gleichgewichtsmodus, und ist dabei auch noch deutlich schneller: Eine global sowie lokal kühlend durchgeführte Messung mit einem Stütztemperaturabstand von 10 K dauert im Gleichgewichtsmodus bei einer Wartezeit von 2 Stunden knapp 2 Tage, im Rampenmodus bei einer Temperaturänderungsgeschwindigkeit von 14 mK/s hingegen nur 3 Stunden.

Zum Verständnis der Messmethode und zum Studium von Querempfindlichkeiten ist der Gleichgewichtsmodus jedoch besser geeignet, da in ihm gezielt Einflussgrößen unterdrückt werden können. Viele der nachfolgend präsentierten Messungen wurden daher im Gleichgewichtsmodus aufgenommen.

¹¹ Die in dieser und den nachfolgenden Tabellen angegebenen Temperaturen sind Soll-Temperaturen, wie sie an die Temperatursteuerung übergeben wurden. In den Graphen werden allerdings die gemessenen Ist-Temperaturen dargestellt. Wie in Abschnitt 3.4 erläutert, können diese sich leicht unterscheiden.

¹² Diese und alle nachfolgend angegebenen Standardfehler wurden über die Gauß'sche Fehlerfortpflanzung mithilfe des Python-Paketes *Uncertainties* berechnet [Lebigot, 2014]

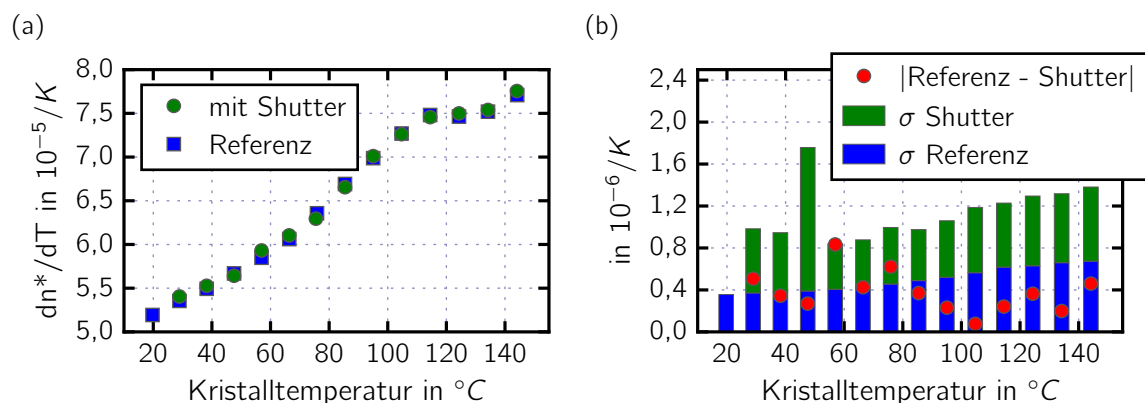
¹³ Im Laufe der Messung des grünen Wertes nahe 80°C hat der OPO einen Modensprung vollzogen. Für den Sinusfit wurde nur ein modensprungfreier Teil der Messpunkte verwendet. Daher ist der Fehlerbalken dieses Wertes deutlich größer.

5.2 Ausschluss von Querempfindlichkeiten

Für die Aussagekraft der Messungen ist es entscheidend, dass der Messwert der Messgröße entspricht, die in Abschnitt 2.2.2 und 2.2.3 vorgestellten Einflussgrößen also vernachlässigbar sind. Dies soll im Folgenden überprüft werden.

5.2.1 photorefraktiver Effekt

In beiden Messmodi wird der zu vermessende Kristall fortlaufend beleuchtet. Dies könnte die Messwerte über den photorefraktiven Effekt verfälschen. Zur Kontrolle wurden daher zwei Messreihen im Gleichgewichtsmodus durchgeführt: Eine Referenzmessung mit kontinuierlicher Beleuchtung und eine Shuttermessung, in der ich den Laser mithilfe eines steuerbaren Shutters geblockt und nur bei Aufnahme eines Messpunktes für die Dauer der Integrationszeit geöffnet habe:



Messreihe	Probe	λ	Polarisation	globales Messintervall	lokale Messrichtung
● ■	CLN	574 nm	e-pol	$20^{\circ}C \xleftarrow[1200\,s]{-10\,K} 150^{\circ}C$	lokal kühlend

Abbildung 14: Ausschluss des photorefraktiven Effekts

Zwei Messreihen an der Probe CLN, durchgeführt im Gleichgewichtsmodus

(a) (potentiell verfälschter) thermooptischer Koeffizient. Bei der Referenzmessung (Quadrate, blau) beleuchtet der Laser durchgehend den zu vermessenden Kristall, bei der Shuttermessung (Kreise, grün) ist er hingegen durch einen Shutter geblockt. Dieser wird nur zur Aufnahme eines Messpunktes für die Dauer der Integrationszeit von ca. 30 s geöffnet

(b) Betrag der Differenz der thermooptischen Koeffizienten (Kreise, rot) und Summe der Standardfehler (Balken, blau-grün) von Referenz- und Shuttermessung an der jeweiligen Stütztemperatur

Aus Abbildung 14 (b) wird ersichtlich, dass im Rahmen der Messgenauigkeit keine Unterschiede zwischen einer Messung mit und ohne Shutter beobachtbar sind.

Diskussion

Da der photorefraktive Effekt sich langsam aufbaut und erst nach längerer Beleuchtung zur Sättigung kommt [vgl. Grousson u. a., 1983], ist er in der Shuttermessreihe mit Sicherheit vernachlässigbar. Aufgrund der beobachteten Übereinstimmung mit der Referenzmessreihe kann daher davon ausgegangen werden, dass der photorefraktive Effekt auch bei kontinuierlicher Beleuchtung, und damit auch im Rampenmodus, irrelevant ist.

Einschränkend muss erwähnt werden, dass mit dem nicht phasenangepassten SHG-Licht des OPOs und daher mit einer Leistung von unter 1 mW gemessen wurde. Im NIR-Zweig des OPOs können aber bis zu 3 mW anfallen und mit dem Helium-Neon-Laser sogar bis zu 5 mW . Um den photorefraktiven Effekt völlig auszuschließen wäre daher eine weitere Shuttermessung mit dem Helium-Neon-Laser sinnvoll. Auch an einer dotierten Probe sollte eine Vergleichsmessung durchgeführt werden, da Verunreinigungen die Hauptursache für den Volumen-photovoltaischen Effekt sind.

5.2.2 pyroelektrischer Effekt

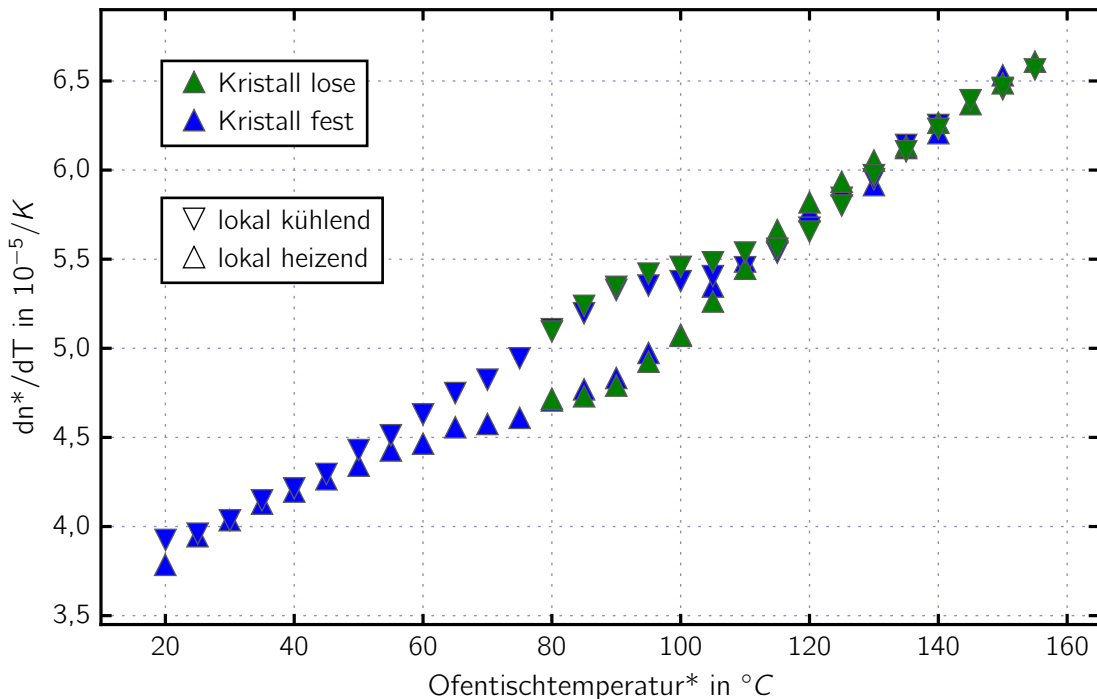
Zur Unterdrückung des pyroelektrischen Effekts sind die z-Flächen der Proben durch Aufputtern eines Goldfilms elektrisch leitend kurzgeschlossen worden. Seine elektrische Leitfähigkeit wurde mithilfe eines Multimeters überprüft.

Interessant wäre zusätzlich eine Vergleichsmessung des thermooptischen Koeffizienten an einer Probe vor und nach dem Besputtern. Leider liegt eine solche Messung nicht vor. Da dieses Verfahren in der Literatur jedoch bereits mehrfach erfolgreich angewendet wurde [vgl. beispielsweise Schwesyg, 2011, S. 77], soll im Folgenden davon ausgegangen werden, dass der pyroelektrische Effekt wirksam unterdrückt und damit vernachlässigbar ist.

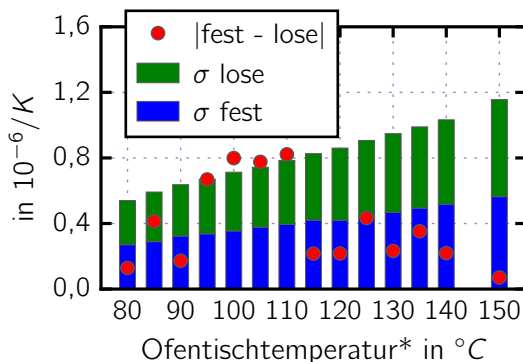
5.2.3 mechanische Spannung

Es soll überprüft werden, ob der Kristall so auf dem Ofentisch festgeschraubt ist, dass mechanische Spannungen aufgrund der Halterung vernachlässigt werden können. Dazu wurde eine Referenzmessung mit festgeschraubtem Kristall und eine Vergleichsmessung, bei der der Kristall ohne Deckel lose auf dem Ofentisch liegt, durchgeführt (vgl. Abbildung 15). Da ohne Deckel keine Kristalltemperatur ermittelt werden kann, werden beide Messungen auf die Ofentischtemperatur bezogen.

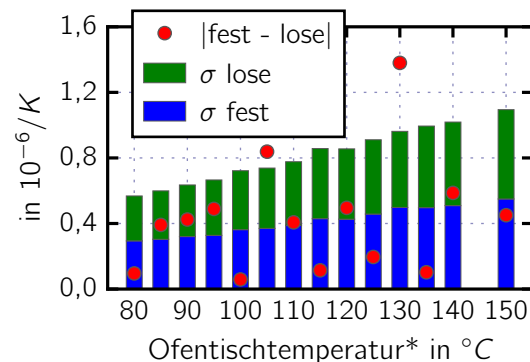
(a)



(b) kühlender Ast: ▽



(c) heizender Ast: △



Messreihe	Probe	λ	Pol.	globales Messintervall	je Stütztemperatur ($\hat{=}$ lokal)
lose: ▲	MgO:CLN	632,8 nm	e-pol	80 °C $\xrightarrow[3000\text{ s}]{+5\text{ K}}$ 155 °C	▲ heizend $\xrightarrow{600\text{ s}}$ ▼ kühlend
fest: ▲	MgO:CLN	632,8 nm	e-pol	20 °C $\xrightarrow[5000\text{ s}]{+5\text{ K}}$ 150 °C	▼ kühlend $\xrightarrow{1000\text{ s}}$ ▲ heizend

Abbildung 15: Ausschluss mechanischer Spannungen durch die Halterung

Zwei Messreihen, durchgeführt im Gleichgewichtsmodus in global heizende Richtung
(a) (potentiell verfälschter) thermooptischer Koeffizient. Bei der Referenzmessung (hinterer Plot, blau) ist der Kristall wie in Abschnitt 3.4 beschrieben auf dem Ofentisch mit einem Deckel festgeschraubt. In der Vergleichsmessung (vorderer Plot, grün) liegt er hingegen ohne Deckel lose auf dem Ofentisch. Auf den Unterschied zwischen lokal heizender und lokal kühlender Messung im Bereich von 60°C bis 110°C wird in Abschnitt 5.3 näher eingegangen.
(b), (c) Betrag der Differenz der thermooptischen Koeffizienten (Kreise, rot) und Summe der Standardfehler (Balken, blau-grün) von Referenz- und Vergleichsmessung an der jeweiligen Stütztemperatur für den kühlenden (b) bzw. heizenden Ast (c)

Referenz- und Vergleichsmessreihe wurden leider nicht bei sonst genau gleichen Bedingungen durchgeführt. Zum einen wurde in der Referenzmessreihe nach Anfahren einer neuen Stütztemperatur und vor Beginn der Messung 5000 s gewartet, in der Vergleichsmessung lediglich 3000 s. Außerdem wurde die Vergleichsmessreihe erst bei 80 °C begonnen und mit einem Ofen ohne Wasserkühlung durchgeführt.

Diskussion

Trotz der ungenügenden Temperaturmessung über die Temperatursteuerung (angezeigt durch den Asterisk an der Ofentischtemperatur in Abbildung 15) hat ein Vergleich der zwei Messreihen mit dem Ziel der Gleichwertigkeit Aussagekraft, da alle Messwerte mit der gleich falschen Kalibrierung aufgenommen wurden.

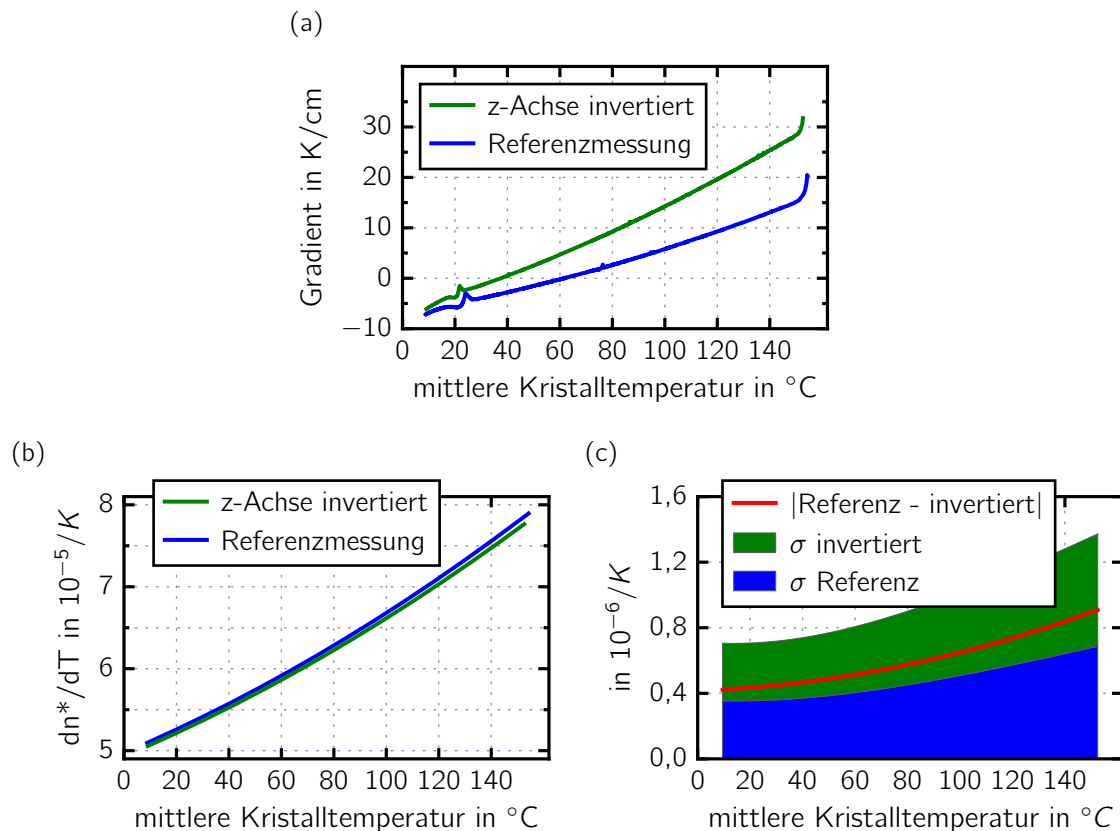
Die Wasserkühlung ist hauptsächlich bei Temperaturen unter Raumtemperatur sowie bei großen Temperatursprüngen in kühlende Richtung notwendig, um ein Überhitzen der Unterseite der Peltier-Elemente beim Kühlen zu verhindern. In heizende Richtung beschleunigt sie lediglich das Füllen des Wärmereservoirs, aus dem die Peltier-Elemente schöpfen. Dies wurde durch eine Anpassung der Regelglieder des PID-Reglers kompensiert. Die fehlende Wasserkühlung in der Vergleichsmessung beeinträchtigt die Vergleichbarkeit der Messreihen daher nicht.

Abschnitt 5.1 hat bereits deutlich gemacht, dass die Wartezeit im Gleichgewichtsmodus wichtig ist. In den dort gezeigten Messreihen unterscheiden sich die Wartezeiten mit einem Verhältnis von 1/6 jedoch deutlich stärker als in den Messreihen dieses Abschnitts mit 3/5. Ich möchte daher davon ausgehen, dass die unterschiedlichen Wartezeiten die Vergleichbarkeit der beiden Messreihen hier nicht beeinträchtigen, auch wenn dies nicht gesichert ist. Gleiches gilt für den Start der Vergleichsmessreihe in der Mitte des globalen Messintervalls.

Unter diesen Annahmen lassen Abbildung 15 (b) und (c) den Schluss zu, dass es keinen Unterschied macht, ob mit losem oder mit festgeschraubtem Kristall gemessen wird. Das bedeutet, dass ein Einfluss einer mechanischen Spannung aufgrund der Halterung vernachlässigbar ist.

Das Auftreten eines primär sowie sekundär elastooptischen Effekts kann dadurch allerdings nicht vollständig ausgeschlossen werden, da auch durch einen inhomogen geheizten Kristall sowie durch den invers-piezoelektrischen Effekt mechanische Spannungen verursacht werden können. Könnte man letzteren ausschließen, dann wäre zudem gezeigt, dass die geometrische Länge des Kristalls sich ausschließlich aufgrund der thermischen Ausdehnung ändert.

5.2.4 räumlicher Temperaturgradient



Messung	Probe	λ	Polarisation	Messintervall	Auswertung
—	CLN	574 nm	e-pol	$10\text{ }^{\circ}\text{C} \xleftarrow{-14\text{ mK/s}} 160\text{ }^{\circ}\text{C}$	über Peakpositionen

Abbildung 16: Ausschluss eines Einflusses des räumlichen Temperaturgradienten

Zwei Messungen, durchgeführt im Rampenmodus in kühlende Richtung

(a) Temperaturgradient über den Kristall vom Ofentisch zum Deckel und damit entlang seiner z-Achse. Ein positiver Gradient bedeutet, dass der Ofentisch heißer als der Deckel ist. Bei der Vergleichsmessung (grün) wurde der Kristall gegenüber der Referenzmessung (blau) um 180° um seine x-Achse gedreht, sodass die z-Achse invertiert ist. ¹⁴

(b) (potentiell verfälschter) thermooptischer Koeffizient ebendieser Messungen.

(c) Betrag der Differenz der thermooptischen Koeffizienten (Linie, rot) und Summe der Standardfehler (Fläche, blau-grün) von Referenzmessung und Messung mit invertierter z-Achse

¹⁴ Der starke Abfall des Gradienten jeweils zu Beginn der Messung (um $155\text{ }^{\circ}\text{C}$) stellt den Übergang von einem Temperaturgradienten bei über lange Zeit konstant gehaltener Ofentischtemperatur zu einem bei sich langsam ändernder Ofentischtemperatur dar.

Der Peak nahe $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ ist jeweils darauf zurückzuführen, dass der Peltier-Ofen bei geringem Abstand zur Raumtemperatur Mühe hat, die korrekte Temperatur einzustellen. Ein solcher „Raumtemperaturdip“ ist auch in Abbildung 8 (a) zu sehen.

Wie bereits in Abschnitt 3.4 erläutert, lässt sich ein räumlicher Temperaturgradient über den Kristall vom Ofentisch zum Deckel nicht vermeiden. Es soll die Frage geklärt werden, ob dieser einen verfälschenden Einfluss auf die Messung hat.

Da Aluminium als elektrischer Leiter eine deutlich höhere Wärmeleitfähigkeit als Lithiumniobat besitzt (vgl. [Wong, 2002, S. 79] und [Davis, 1993, S. 146]), vernachlässige ich im Folgenden den Temperaturabfall über Ofentisch und -deckel und nehme an, die gemessene Temperaturdifferenz falle vollständig über der Lithiumniobatprobe ab. Um den Temperaturgradienten probenunabhängig vergleichen zu können, teile ich die Temperaturdifferenz zudem durch die Probendicke (vgl. Tabelle 2). Daher ist der Temperaturgradient in der Einheit K/cm angegeben.

Die beiden in Abbildung 16 dargestellten Messungen unterscheiden sich in der Durchführung nur in der Orientierung der z-Achse bezüglich des Temperaturgradienten. Sie weisen jeweils einen unterschiedlich großen Temperaturgradienten zwischen Ofentisch und Deckel auf. Im Rahmen der Messgenauigkeit wurde in beiden Messungen das Gleiche gemessen.

Diskussion

KOSTRITSKII et. al. haben bereits festgestellt, dass es über räumliche Temperaturgradienten in Lithiumniobat nur wenig Untersuchungen in der Literatur gibt [Kostritskii u. a., 2008, S. 104]. In ihrer eigenen Arbeit haben sie die Ausnutzung eines solchen zur Minimierung des photorefraktiven optischen Schadens, das heißt einer unerwünschten Brechungsindexänderung bei Beleuchtung, in undotiertem Lithiumniobat behandelt. Sie kommen zu dem Schluss, dass eine Schwelle von $32 K/cm$ überschritten werden muss, damit der Temperaturgradient Auswirkungen hat. Die in dieser Arbeit auftretenden Temperaturgradienten reichen mit maximal $30 K/cm$ nah an dieses Limit heran, überschreiten es jedoch nicht (vgl. Abbildung 16 (a)). Dies spricht dafür, dass der Temperaturgradient unbedenklich ist und damit keine Störgröße darstellt.

Diesen Schluss unterstützen die in Abbildung 16 gezeigten Messungen, in denen trotz unterschiedlichem Temperaturgradienten kein Unterschied im Messergebnis festgestellt werden kann. Dass sich der Temperaturgradient durch Umkehr der z-Achse halbiert, entsprach nicht meinen Erwartungen. Ich halte es daher für möglich, dass die Halbierung des Gradienten auch auf eine andere, unbekannte Ursache zurückzuführen ist.

Um die Annahme der Vernachlässigbarkeit des Temperaturgradienten zweifelsfrei zu belegen, wäre zusätzlich eine Messung mit vollständig unterdrücktem Temperaturgradienten sinnvoll. Dies kann beispielsweise realisiert werden, indem auch der Deckel aktiv temperiert wird. Führt man eine solche Messung im Gleichgewichtsmodus durch, könnte jeweils vor Aufnahme eines Messpunktes die Deckeltemperatur solange nachgeregelt werden, bis der Temperaturgradient minimal ist. Dies ist regelungstechnisch allerdings schwierig umzusetzen, da zwei unabhängig voneinander agierende PID-Regler aufeinander abgestimmt werden müssen.

5.3 Drift

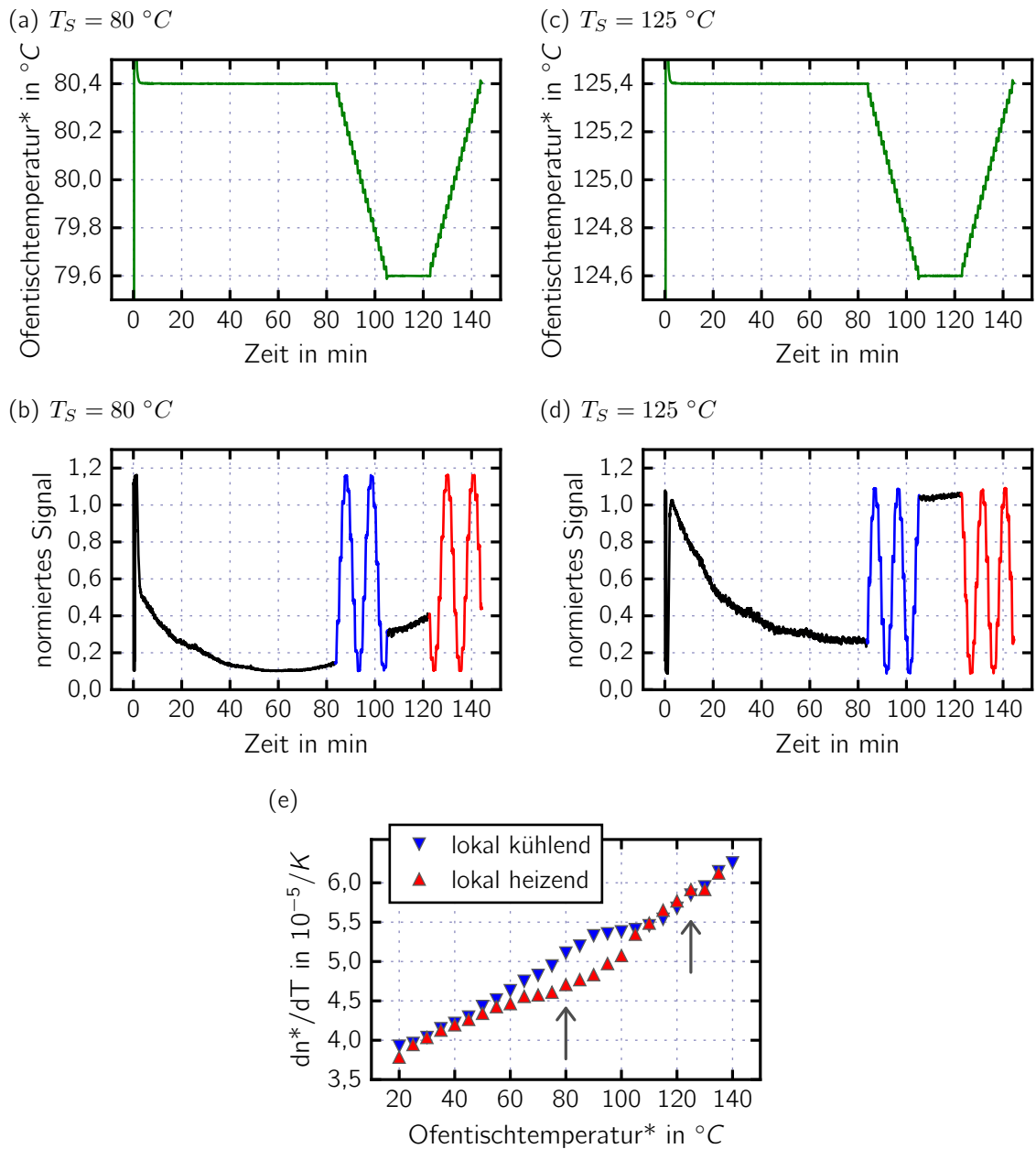
Im Gleichgewichtsmodus kann in der Wartezeit zwischen zwei Messungen einer Messreihe, das heißt bei konstanter Kristalltemperatur, ein Drift im Signal beobachtet werden. Abbildung 17 zeigt dies exemplarisch an einer global heizend und jeweils direkt hintereinander lokal kühlend sowie heizend durchgeführten Gleichgewichtsmessreihe.

In Abbildung 17 (b) durchläuft der Drift¹⁵ ein Minimum. Dies deutet darauf hin, dass das sinusförmige Signal selbst driftet, und nicht der Messprozess in der Photodiode. Die Richtung des Drifts kann am Übergang zwischen Drift und Messung abgelesen werden: Ist das Vorzeichen der Steigung des normierten Signals vor und nach dem Übergang gleich, so verlaufen sie in die gleiche Richtung, im anderen Fall entgegengesetzt. Bei einer Stütztemperatur von 80°C (Abbildung 17 (b)) bleibt das Vorzeichen der Steigung an den Übergängen vor und nach der kühlenden Messung gleich, am Übergang zur heizenden Messung kehrt es sich hingegen um. Ich werde die Richtung dieses Drifts daher (rein deskriptiv) als *kühlend* bezeichnen.

Bei einer Stütztemperatur von 125°C (Abbildung 17 (d)) ist die Driftrichtung genau umgekehrt, also heizend. Erkennbar ist dies allerdings nur am Drift vor der kühlenden Messung, da das normierte Signal sich vor der heizenden Messung in einem Maximum des Sinus' befindet. In einem solchen kann aufgrund der Symmetrie eines Sinus' prinzipiell keine Richtungsumkehr und ein Drift aufgrund der geringen Steigung in diesem Bereich nur schlecht erkannt werden.

Mit dem Drift korreliert spalten die Werte des an einer Stütztemperatur heizend bzw. kühlend gemessenen thermooptischen Koeffizienten ab etwa 60°C weiträumig auf (vgl. Abbildung 17 (e)). Bei etwa 110°C kreuzen sich der heizende und kühlende

¹⁵ Laut des Dudens ist das Wort *Drift* weiblich. Ich werde es hier jedoch in männlicher Form verwenden, da dies meines Erachtens unter Physikern üblich ist.



Probe	λ	Polarisation	globales Messintervall	je Stütztemperatur ($\hat{=}$ lokal)
MgO:CLN	632,8 nm	e-pol	$20\text{ }^{\circ}\text{C} \xrightarrow[5000\text{ s}]{+5\text{ K}} 140\text{ }^{\circ}\text{C}$	▼ kühlend $\xrightarrow{1000\text{ s}}$ ▲ heizend

Abbildung 17: Signaldrift bei konstanter Kristalltemperatur

Zwei Ausschnitte des zeitlichen Verlaufs der Ofentischtemperatur* (a,c) und des normierten Signals (b,d) einer Messreihe, durchgeführt im Gleichgewichtsmodus. Abgebildet sind je zwei Messungen der Messreihe inklusive vorheriger Wartezeit (schwarz), jeweils die erste lokal kühlend (blau) und die zweite lokal heizend (rot), durchgeführt an der Stütztemperatur $80\text{ }^{\circ}\text{C}$ (a,b) bzw. $125\text{ }^{\circ}\text{C}$ (c,d). Die starke Temperaturänderung zu Beginn in (a) bzw. (c) ist jeweils der Wechsel zur hier gezeigten Stütztemperatur.

(e) (potentiell verfälschter) thermooptischer Koeffizient der gesamten Messreihe. Die in (a,b) und (c,d) gezeigten Messungen der Messreihe sind durch Pfeile markiert

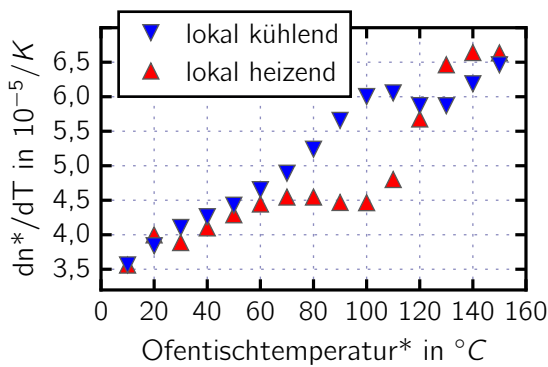
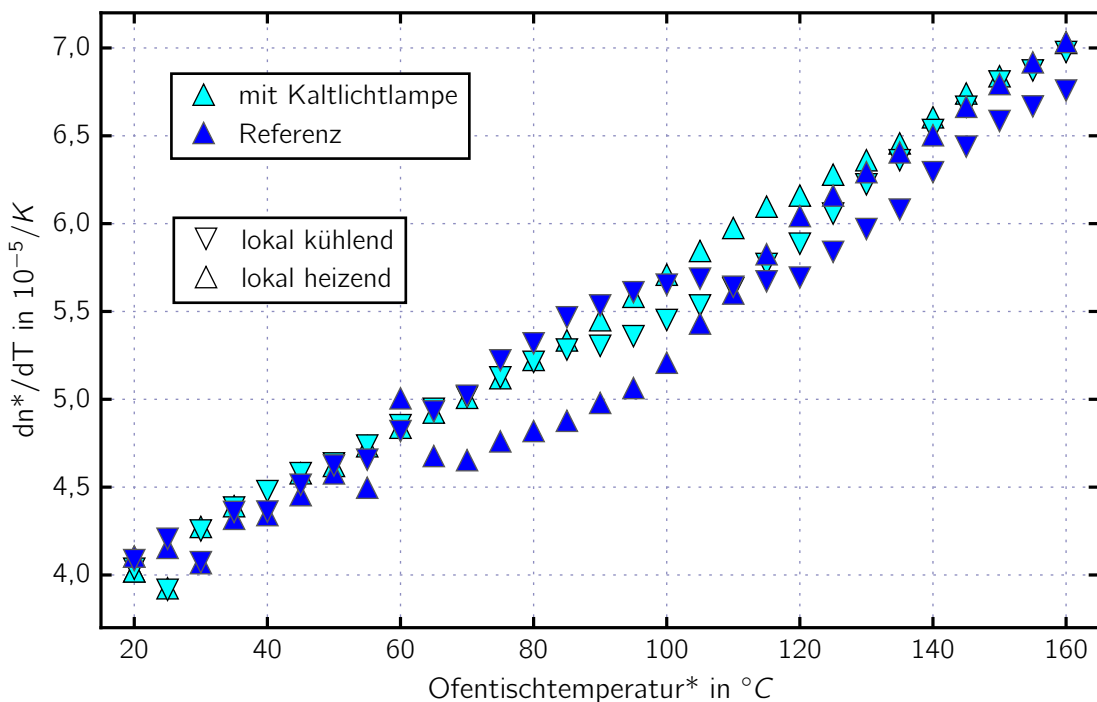


Abbildung 18: Aufspaltung des heizenden und kühlenden Astes

(potentiell verfälschter) thermooptischer Koeffizient einer Messreihe im Gleichgewichtsmodus. Der Kreuzungspunkt des heizenden und kühlenden Astes bei etwa 120 °C ist hier gut zu erkennen

Probe	λ	Polarisation	globales Messintervall	je Stütztemperatur ($\hat{=}$ lokal)
MgO:CLN	632,8 nm	e-pol	$10\text{ }^{\circ}\text{C} \xrightarrow[600\text{ s}]{+10\text{ K}} 150\text{ }^{\circ}\text{C}$	▲ heizend $\xrightarrow[120\text{ s}]{} \blacktriangledown$ kühlend



Messreihe	Probe	λ	Pol.	globales Messintervall	je Stütztemperatur ($\hat{=}$ lokal)
▲	CLN	632,8 nm	e-pol	$20\text{ }^{\circ}\text{C} \xrightarrow[3400\text{ s}]{+5\text{ K}} 160\text{ }^{\circ}\text{C}$	▲ heizend $\xrightarrow[600\text{ s}]{} \blacktriangledown$ kühlend
▲	CLN	632,8 nm	e-pol	$20\text{ }^{\circ}\text{C} \xrightarrow[2400\text{ s}]{+5\text{ K}} 160\text{ }^{\circ}\text{C}$	▲ heizend $\xrightarrow[600\text{ s}]{} \blacktriangledown$ kühlend

Abbildung 19: Messung mit Kaltlichtlampe

(potentiell verfälschter) thermooptischer Koeffizient zweier Messreihen im Gleichgewichtsmodus. In der Vergleichsmessung (hinterer Plot, cyan) wurde der Kristall zusätzlich mit einer Kaltlichtlampe mit einer Farbtemperatur von 3300 K und einer Lichtleistung von 1 W bestrahlt. Daraufhin ist nur noch eine Aufspaltung von heizendem und kühlendem Ast und kein Kreuzungspunkt mehr zu beobachten

Ast und kehren damit die Aufspaltung um. Besser zu erkennen ist dies in der in Abbildung 18 dargestellten Messreihe, die mit einem größeren Stütztemperaturabstand von 10 K und einer deutlich geringeren Wartezeit zwischen zwei Stütztemperaturen von 600 s durchgeführt wurde.

Einen Einfluss der Reihenfolge der an einer Stütztemperatur durchgeführten Messungen konnte nicht festgestellt werden.

Um die Ursache des Drifts zu verstehen, wurde eine Vergleichsmessung durchgeführt, in der der Kristall durchgängig von einer Kaltlichtlampe mit einer Farbtemperatur von 3300 K und einer Lichtleistung von 1 W bestrahlt wurde (vgl. Abbildung 19). Ohne Kaltlichtlampe ist die bereits aus Abbildung 18 bekannten doppelte Aufspaltung zu erkennen. Mit Kaltlichtlampe ist hingegen nur noch eine Aufspaltung vorhanden, deren Richtung sich mit der Aufspaltung der Referenzmessung bei höheren Temperaturen deckt.

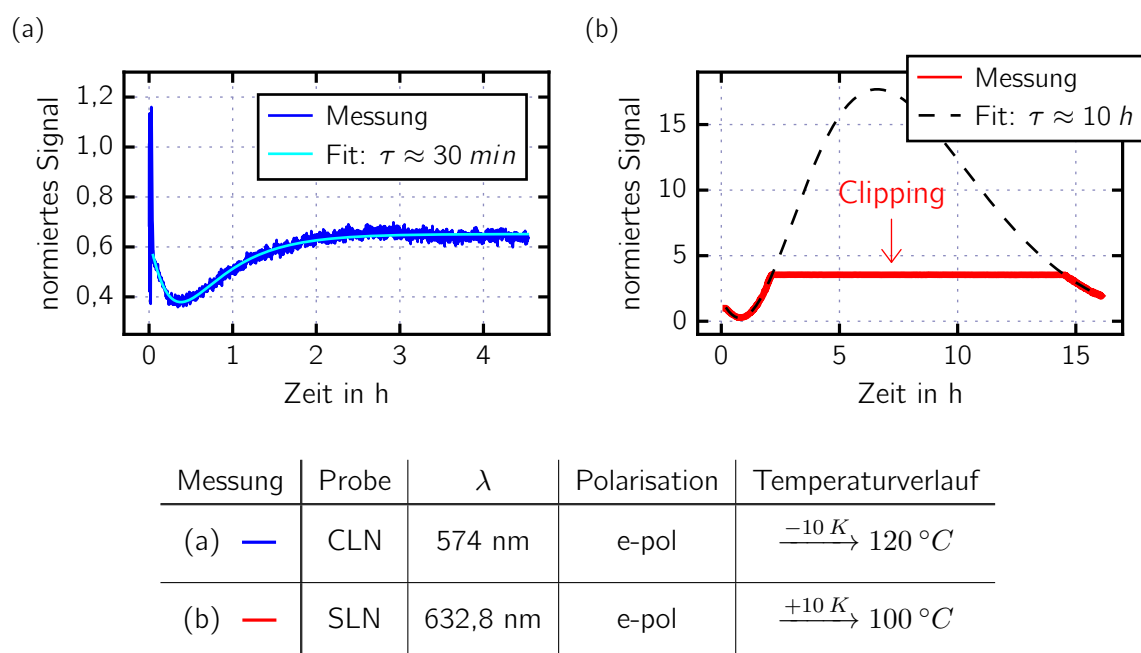


Abbildung 20: Abklingverhalten des Drifts

Drift des normierten Signals bei konstanter Kristalltemperatur nach einem Temperatursprung und Fit eines exponentiell abklingenden Sinus' nach Gleichung (XIV) an die Verlaufsdaten (a) Der kühlende Temperatursprung verursacht den starken Signalausschlag zu Beginn. Vergrößert wäre ein schnelles, sinusförmiges Schwingen erkennbar.

(b) Die Messung wurde erst nach dem Erreichen der Zieltemperatur eingeschaltet, daher sind Amplitude und Ordinatenabschnitt der anfänglichen Sinusschwingung unbekannt. Zudem wurde die Signaldiode im falschen Messbereich verstärkt, sodass sie lange Zeit clippt. Der exponentiell abklingende Sinusfit an den nicht clippenden Teil der Daten ist gewagt und soll nur als Anhaltspunkt dienen

Betrachtet man den Drift bei konstanter Temperatur über lange Zeit, so stellt man fest, dass er abklingt. Dies ist in Abbildung 20 exemplarisch dargestellt. Die exponentiell abklingenden Sinusfits zur Ermittlung der Zeitkonstante τ wurden mit folgender funktionalen Form durchgeführt:

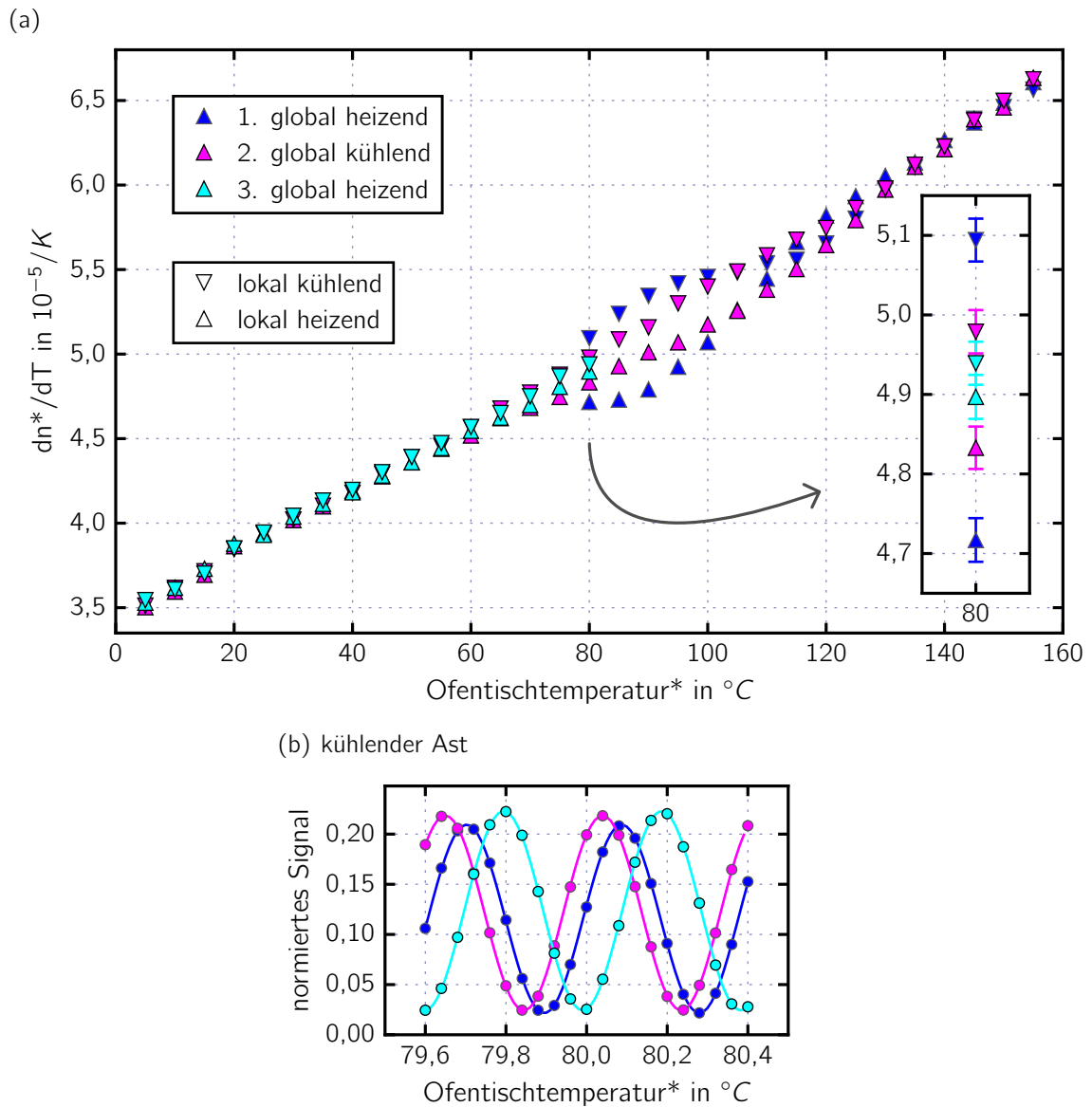
$$f(t) = y_0 + A \cdot \sin(\omega \cdot e^{-t/\tau} - \varphi_0) \quad (\text{XIV})$$

In Abbildung 20 (a) wurden Amplitude A und Ordinatenabschnitt y_0 zudem konstant gehalten, da sie aus dem Beginn der Messung abgelesen werden können.

Das Abklingverhalten des Drifts hängt vermutlich von vielen Faktoren ab und ist noch nicht vollständig verstanden. Beobachtet wurde, dass der Drift umso stärker ausfällt, je größer der Temperatursprung zwischen zwei Stütztemperaturen ist (vgl. dazu Abbildung 17 (e) und Abbildung 18). Auch ist er bei Messungen in global kühlende Richtung tendenziell schwächer. Neben der Kristalltemperatur und der Höhe und Richtung des Temperatursprungs vor dem Drift könnten auch die Stöchiometrie des Kristalls und die „Vorgeschichte“, das heißt der bisherige Ablauf der Messung, eine Rolle spielen. Letzteres soll im Folgenden verdeutlicht werden.

Durchläuft man das globale Messintervall einer Messreihe zyklisch wiederholend, stellt man fest, dass die Aufspaltung der an einer Stütztemperatur direkt hintereinander heizend und kühlend gemessenen Werte mit der Anzahl an Wiederholungen abnimmt. In Abbildung 21 (a) ist dies in der Vergrößerung bei 80°C gut zu erkennen. Dies nenne ich rein deskriptiv *Hysteresis-Effekt*, ohne durch diese Namensgebung automatisch die Hysteresis von Ferroelektrika als Ursache zu meinen. Abbildung 21 (b) zeigt, dass an dieser Stütztemperatur auch ein Phasenversatz zwischen den drei zu unterschiedlichen Zeitpunkten im Verlauf der Messreihe durchgeführten Messungen besteht. Dieser ist nicht mit dem Unterschied in ihrer Periodenlänge korreliert.

Im Rampenmodus kann der Drift prinzipiell nicht direkt beobachtet werden, da die Temperatur in diesem Modus zu keinem Zeitpunkt konstant gehalten wird. Außerdem gibt es in ihm keine Unterscheidung zwischen lokaler und globaler Richtung der Temperaturänderung. Zum Vergleich der beiden Messmodi können daher nur die ausgewerteten Ergebnisse und nicht der zeitliche Verlauf der Messsignale verwendet werden. Zudem sind nur solche Gleichgewichtsmessungen mit dem Rampenmodus vergleichbar, in denen die lokale und globale Richtung der Temperaturänderung identisch ist.



Probe	λ	Pol.	globaler Ablauf der Messreihe	je T_S
MgO:CLN	632,8 nm	e-pol	80 °C $\xrightarrow[3000\text{ s}]{+5\text{ K}}$ 155 °C $\xrightarrow[3000\text{ s}]{-5\text{ K}}$ 5 °C $\xrightarrow[3000\text{ s}]{+5\text{ K}}$ 80 °C	$\Delta \xrightarrow{600\text{ s}} \nabla$

Abbildung 21: Hysterese-Effekt

(a) (potentiell verfälschter) thermooptischer Koeffizient einer Messreihe im Gleichgewichtsmodus. Die Messreihe beginnt bei 80 °C in global heizende Richtung (hinterer Plot, blau), ab 155 °C wird sie in global kühlende Richtung fortgesetzt (mittlerer Plot, magenta) und anschließend von 5 °C ausgehend in global heizende Richtung bei 80 °C beendet (vorderer Plot, cyan). In der Vergrößerung dargestellt sind die Werte an der Stütztemperatur 80 °C inklusive ihrer Standardfehler

(b) Messpunkte und Sinusfits der drei Messungen des kühlenden Astes an der Stütztemperatur 80 °C. Ihre leicht voneinander abweichende Periodenlänge ist in dieser Darstellung nicht erkennbar. Sichtbar ist dafür ein deutlicher Phasenversatz. Der hier nicht gezeigte heizende Ast weist ebenfalls einen Phasenversatz auf

Beachtet man dies, so kann auch im Rampenmodus eine Aufspaltung der Messwerte bei mittleren Temperaturen¹⁶ beobachtet werden:

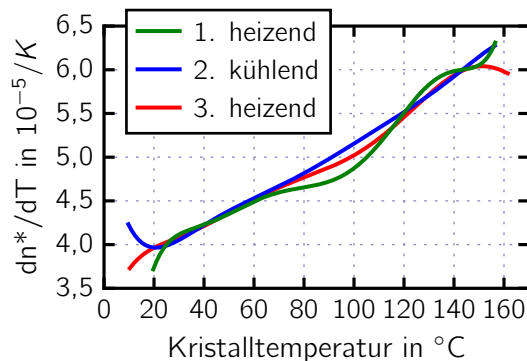


Abbildung 22: Rampenmodus - Hysterese
Abweichend von der in Abschnitt 3.5.2 vorgestellten Methode wurde hier ein Polynomfit 8. Grades durch den Peaknummern-über-Peakpositionen-Graph gelegt, um den Kurvenverlauf vollständig abbilden zu können.¹⁷ Die zweite und dritte Messung wurden direkt hintereinander durchgeführt

Messung	Probe	λ	Polarisation	Messintervall	Auswertung
—	CLN	910 nm	e-pol	$20\text{ }^{\circ}\text{C} \xrightarrow{+3\text{ mK/s}} 160\text{ }^{\circ}\text{C}$	über Peakpositionen, Polynomfit 8. Grades
— —	CLN	910 nm	e-pol	$10\text{ }^{\circ}\text{C} \xleftarrow{-7\text{ mK/s}} \xrightarrow{+3\text{ mK/s}} 160\text{ }^{\circ}\text{C}$	über Peakpositionen, Polynomfit 8. Grades

Vor der ersten Messung (grün, heizend, vorderer Plot) befand sich der Kristall lange Zeit bei Raumtemperatur. Die zweite (blau, kühlend, mittlerer Plot) und dritte (rot, heizend, hinterer Plot) Messung wurden hingegen direkt hintereinander durchgeführt. Beide heizenden Messungen weichen vom Verlauf der kühlenden Messung ab, die letztere (rot) jedoch deutlich weniger. Der in Abbildung 21 vorgestellte Hysterese-Effekt kann somit auch im Rampenmodus beobachtet werden. Interessant ist zudem, dass die kühlende Messung (blau), anders als im Gleichgewichtsmodus, ohne sichtbare Wölbung bei mittleren Temperaturen und damit nicht symmetrisch zu den heizenden Messungen verläuft.

Der in diesem Abschnitt vorgestellte Drifteffekt und seine Folgeerscheinungen tritt in beiden Polarisationsrichtungen auf, obwohl hier nur Messungen in außerordentlicher Polarisation präsentiert wurden. Eine Dotierungsabhängigkeit konnte nicht festgestellt werden. Bei der Probe *SLN* ist die Aufspaltung der an gleicher Stütztemperatur

¹⁶ Die Temperaturangaben *niedrig*, *mittel* bzw. *hoch* beziehen sich immer auf das globale Messintervall.

¹⁷ Das Abknicken der Kurven an den Rändern ist darauf zurückzuführen, dass sie auf der Ableitung eines Polynomfits beruhen. In einer solchen deutet sich das Globalverhalten eines Polynoms, außerhalb des Fitbereichs gegen $\pm\infty$ zu streben, bereits an. Die äußeren $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ werden daher jeweils nicht mehr zum Gültigkeitsbereich der Messung gezählt.

lokal heizend und kühlend gemessenen Werte allerdings deutlich geringer, obwohl ein Drift im Verlauf erkennbar ist.

Diskussion

Da der Drift auch bei konstanter Temperatur auftritt, kann er nicht thermooptischen Ursprungs sein. Folglich ist er eine Einflussgröße, die für eine unverfälschte Messung des thermooptischen Koeffizienten unterdrückt werden muss. Vor jeder Gleichgewichtsmessung das Abklingen des Drifts abzuwarten ist aufgrund der zum Teil großen Zeitkonstante kein praktikabler Weg.

Der Drift in Abbildung 17 (c) und (d) existiert jeweils sowohl vor als auch nach Durchführung der eigentlichen Messung. Daher ist davon auszugehen, dass er auch während der Messung besteht und sich mit der Änderung der optischen Weglänge aufgrund der Temperaturänderung überlagert. Auf diese Weise lässt sich die in Abbildung 17 (e) gezeigte Aufspaltung der an einer Stütztemperatur heizend und kühlend gemessenen Werte verstehen: Sowohl der Drift als auch die Temperaturänderung verursachen ein „Wandern“ des Interferenzstreifenmusters vor der Lochblende der Signaldiode. Überlagern sich beide Effekte additiv, bewegt sich das Interferenzstreifenmuster schneller vor der Lochblende entlang als ungestört. Dies hat in der Auswertung eine gegenüber einer unverfälschten Messung verkürzte Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ zufolge. Da die Periodenlänge reziprok in den thermooptischen Koeffizienten eingeht (vgl. Gleichung (IX)), ist dieser folglich überschätzt. Analog erfolgt die Argumentation, wenn die Bewegung des Interferenzmusters aufgrund des Drifts und der Temperaturänderung entgegengesetzt sind: In Überlagerung wird die Bewegung des Interferenzmusters dann ausgebremst, die Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ dadurch überschätzt und der thermooptische Koeffizient unterschätzt.

Der wahre Wert des thermooptischen Koeffizienten liegt zwischen dem über- und unterschätzten Wert. Wäre der Drift zeitlich konstant, so läge er genau in der Mitte und man könnte ihn durch Mittelwertbildung bestimmen. Aufgrund des abklingenden Drifts ist dieses Vorgehen jedoch nicht möglich.

Durch das aus dem Vergleich von Abbildung 17 (b) und (d) erkennbare Umdrehen des Drifts kann außerdem der Kreuzungspunkt von heizendem und kühlendem Ast in Abbildung 17 (e) und Abbildung 18 erklärt werden. Daher ist davon auszugehen, dass der Korrelation von Drift und Aufspaltung auch eine Kausalität zugrunde liegt. Gestützt wird diese Theorie durch den in Abbildung 21 (b) gezeigten Phasenversatz, wenn man diesen als Summe der zusätzlichen Verschiebungen des Interferenzmusters

aufgrund des Drifts (modulo $\Delta T_{2\pi}$) interpretiert. Ohne Drift wäre nämlich zu erwarten, dass die räumliche Position eines Intensitätsmaximums des Interferenzmusters auch bei mehrmaligem Erhitzen und Abkühlen des Kristalls reproduzierbar ist, da die thermische Ausdehnung sowie die thermooptische Brechungsindexänderung reversibel sind.

Ein möglicher Erklärungsansatz dafür, dass die Aufspaltung bei mittleren Temperaturen am größten ist, ist folgender: Angenommen, die Ursache des Drifts nehme mit der Kristalltemperatur zu (sei es die Kristalltemperatur selbst, der Temperaturgradient über den Kristall, ...), die Kopplungsstärke zwischen Ursache und Drift (sein Koeffizient) jedoch mit steigender Kristalltemperatur ab. Dann ist das Produkt aus verursachender Größe und Koeffizient, sprich der Drift als Folge, bei mittleren Temperaturen am größten.

Ein pyroelektrischer Effekt sowie mechanische Spannungen aufgrund der Halterung können als Ursache des Drifts ausgeschlossen werden (vgl. Abschnitt 5.2.2 und 5.2.3), ein photorefraktiver Effekt ist unwahrscheinlich (vgl. Abschnitt 5.2.1). Ein thermisch verursachtes mechanisches Driften von Komponenten des Aufbaus ist ebenfalls unwahrscheinlich, da nicht ersichtlich ist, weshalb dies reproduzierbar bei mittleren Temperaturen auftreten sollten. Um dies zu bestätigen und damit den Messaufbau als Ursache auszuschließen, wäre eine Vergleichsmessung an beispielsweise Quarzglas sinnvoll, in der dann weder ein Drift noch eine Aufspaltung der Messwerte bei mittleren Temperaturen erkennbar sein sollte. Durchgeführte Messungen hatten leider nicht die erforderliche Güte, um aussagekräftig zu sein.

Einen Hinweis auf die Natur des Drifts kann der Umstand geben, dass die Aufspaltung der Werte in *SLN* deutlich kleiner ausfällt als in *MgO:CLN* und *CLN*. Dies könnte zum einen auf die unterschiedliche Stöchiometrie zurückzuführen sein. Dann wären Fehlstellen bzw. Unregelmäßigkeiten im Gitter eine Bedingung für das Auftreten des Drifts. Zum anderen ist *SLN* die einzige Probe, bei der die z-Achse waagrecht zum Labortisch steht und damit nicht entlang des Temperaturgradienten zeigt. Dies lässt die Hypothese zu, dass der Temperaturgradient entlang der z-Achse für den Drift verantwortlich ist.

Eine Brechungsindexänderung aufgrund eines räumlichen Temperaturgradienten entlang der z-Achse haben auch HU et. al. in Lithiumniobat beobachtet und wie folgt begründet: Der Temperaturgradient verursacht lokale Verspannungen im Kristall.

Diese lösen den piezoelektrischen Effekt aus, der daraufhin ein Depolarisationsfeld aufbaut. Dies bezeichnen HU et. al. zusammenfassend als *tertiär pyroelektrischen Effekt*. Das elektrische Feld verursacht dann über den elektrooptischen Effekt die beobachtete Brechungsindexänderung. Stärke und Richtung der Brechungsindexänderung hängen dabei von denen des Temperaturgradienten ab. Da der Temperaturgradient in den Messungen dieser Arbeit mit steigender Kristalltemperatur zunimmt (vgl. Abbildung 16 (a)), wäre dadurch das Auftreten des Drifts erst bei mittleren Temperaturen erklärt. Das Abnehmen des Drifts bei hohen Temperaturen kann nach HU et. al. ebenfalls verstanden werden: Mit der Temperatur steigt die Beweglichkeit freier Ladungsträger, die entlang des elektrischen Feldes driften und dadurch ein Feld aufbauen, dass dem elektrooptisch erzeugten entgegenwirkt [vgl. Hu u. a., 1987]. Nicht erklärt werden kann über diese Theorie allerdings die beobachtete Umkehr der Driftrichtung bei höheren Temperaturen. Zur Überprüfung wäre die bereits in Abschnitt 5.2.4 vorgeschlagene Vergleichsmessung mit aktiv temperiertem Deckel zur Unterdrückung des Temperaturgradienten aufschlussreich.

Einen letzten Hinweis auf die Natur des Drifts kann die Vergleichsmessung mit Kaltlichtlampe in Abbildung 19 geben. Eine Beleuchtung mit einer Kaltlichtlampe bewirkt, dass sich auch lokal im Volumen des Kristalls entstehende elektrische Felder schnell wieder abbauen [vgl. beispielsweise Breer u. a., 1998]. Eine Messung mit Kaltlichtlampe schließt daher elektrooptische Effekte aus.

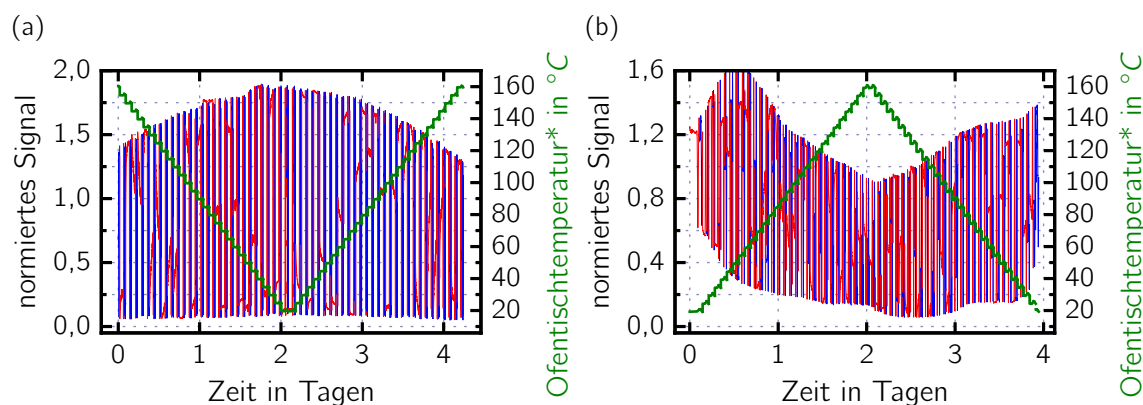
Zur Erklärung der beobachteten Unterschiede führe ich folgende Hypothese ein: In den Abbildungen 17(b,d,e) bis 19, 21 (a) und 22 liegen jeweils zwei entgegengesetzte Drifts unterschiedlicher Ursache vor. Ihre Stärke ist temperaturabhängig und ihr stärkster Punkt fällt nicht zusammen. Überlagert ergeben sie die Aufspaltung von heizendem und kühlendem Ast inklusive Kreuzungspunkt. Wenn nun die Ursache des Drift bei geringerer Temperatur elektrooptischer Natur, die des Drifts bei höherer Temperatur hingegen nicht, so kann verstanden werden, dass in der Messung mit Kaltlichtlampe in nur noch Zweiterer auftritt. Auf den Drift elektrooptischer Natur kann beispielsweise der Erklärungsansatz nach HU et. al. angewendet werden.

Die Natur des Drift bei höheren Temperaturen ist damit allerdings noch nicht verstanden. Eine Erklärungen könnten Tieftemperaturphasenübergänge sein [vgl. Wong, 2002, S. 13f.]. In der Literatur wurde jedoch über noch weitere „Anomalien“ von Lithiumniobat in diesem Temperaturbereich berichtet. WANG et. al. fassen die jeweiligen Erklärungsansätze in die drei Kategorien „stress model, microstructure model, and

phase transition model" [Wang u. a., 1985, S. 275] zusammen. Unter Ersteres fällt das obige Modell von HU et. al. Da Lithiumniobat zudem ferroelektrisch ist, könnte das Abnehmen der Aufspaltung bei mittleren Temperaturen durch Wiederholung der Messung in Abbildung 21 auch auf Hystereseeffekte zurückzuführen sein.

Auch wenn hier mehrere Hypothesen zur Ursache des Drifts aufgestellt worden sind, so ist er noch nicht endgültig verstanden. Abschließend soll daher die Frage geklärt werden, wie er experimentell umgangen werden kann. Die Beobachtung, dass der Drift stärker ausfällt, je größer der Temperatursprung davor ist, deuten darauf hin, dass der Rampenmodus einen konzeptionellen Vorteil hat, da es in ihm keine Temperatursprünge gibt. Die Beobachtung, dass der Drift in kühlende Richtung generell kleiner ist, bekräftigt zudem die Vermutung, dass die nicht vorhandene Auswölbung in der im Rampenmodus durchgeführten kühlenden Messung in Abbildung 22 darauf zurückzuführen ist, dass der Drift hier vernachlässigbar klein ist. Es soll daher im Folgenden davon ausgegangen werden, dass eine derart durchgeführte Messung am besten zur Bestimmung des thermooptischen Koeffizienten geeignet ist.

5.4 Amplitudenschwankung



Messreihe	Probe	λ	Pol.	globales Messintervall	je Stütztemperatur ($\hat{=}$ lokal)
(a)	SLN	632,8 nm	e-pol	$20\text{ }^{\circ}\text{C} \xleftarrow[3900\text{ s}]{5\text{ K}} 160\text{ }^{\circ}\text{C}$	heizend $\xrightarrow{600\text{ s}}$ kühlend
(b)	CLN	632,8 nm	e-pol	$20\text{ }^{\circ}\text{C} \xleftarrow[2400\text{ s}]{5\text{ K}} 160\text{ }^{\circ}\text{C}$	heizend $\xrightarrow{600\text{ s}}$ kühlend

Abbildung 23: Amplitudenschwankung

zeitlicher Verlauf zweier Messreihen im Gleichgewichtsmodus. Zu erkennen ist jeweils eine langsame Schwankung der Amplitude des normierten Signals (rot-blau), die in (a) sehr gut, in (b) hingegen nur zum Teil mit der Ofentischtemperatur* (rechte Ordinate, grün) korreliert

Betrachtet man die Einhüllende des zeitlichen Verlaufs einer Messreihe im Gleichgewichts- oder Rampenmodus, so kann eine in Abbildung 23 exemplarisch dargestellte langsame Variation der Signalamplitude festgestellt werden. Sie ist locker mit der Ofentischtemperatur und der globalen Richtung der Temperaturänderung korreliert.

Diskussion

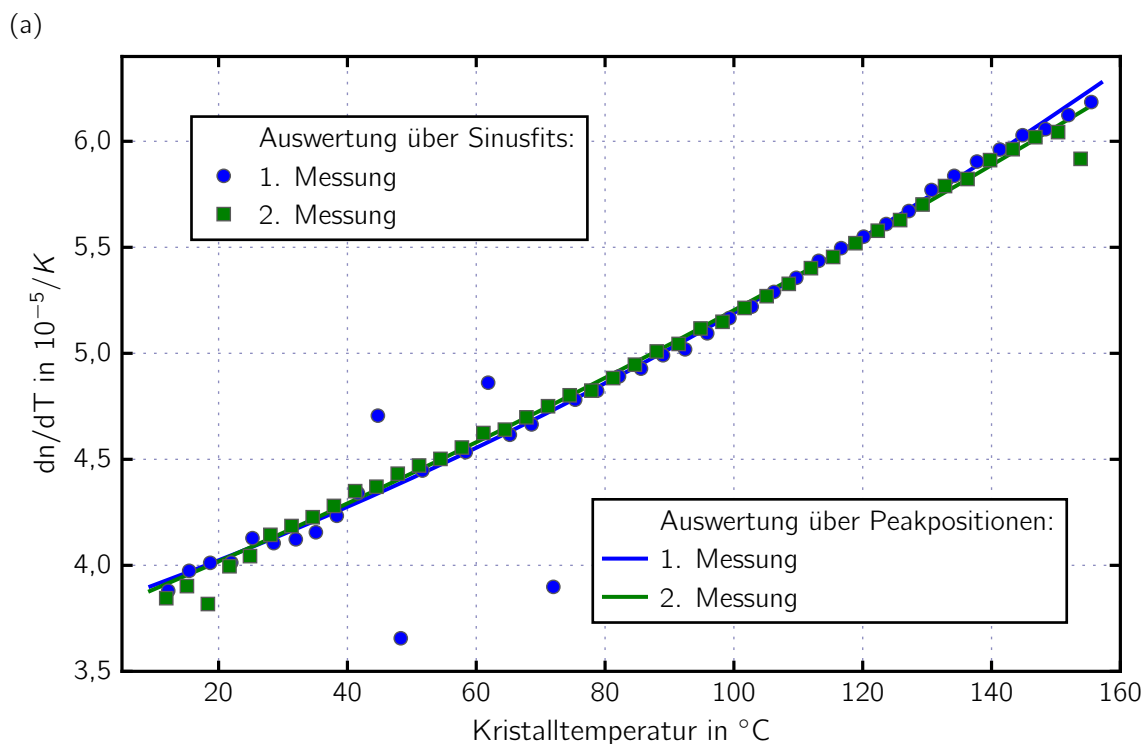
Eine mögliche Ursache für diese Schwankung könnte eine Verschiebung der durch das Interferenzmuster ausgeleuchteten Fläche als Ganzes aufgrund einer thermischen Ausdehnung der Kristallhalterung sein, da dem Interferenzmuster in etwa ein gaußförmiges Intensitätsprofil überlagert ist. Dies wäre insofern bedeutsam, als durch eine solche Verschiebung auch die Messung der Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ verfälscht werden könnte. Daher wurde diese Theorie überprüft, indem anstelle der Signalphotodiode eine Kamera montiert und mit dieser eine vollständige Messung im Rampenmodus aufgezeichnet wurde. In dem Video konnte keine Verschiebung der (im Mittel) ausgeleuchteten Fläche festgestellt werden.

Da die Skalierung der Amplitude bei der Bestimmung der Periodenlänge eines Sinus irrelevant ist und die hier beobachtete Schwankung der Amplitude so langsam ist, dass ein einzelner Sinusfit dadurch nicht beeinflusst wird, wurde ihrer Ursache daraufhin nicht weiter auf den Grund gegangen.

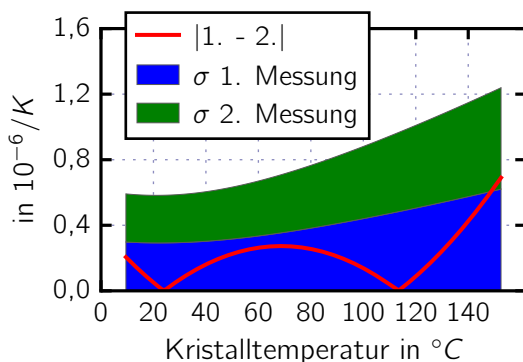
5.5 Messgenauigkeit

Da für die in Abschnitt 5.6 und 5.7 vorgestellten Messungen des thermooptischen Koeffizienten der Rampenmodus verwendet wird, werde ich hier nur auf seine Messgenauigkeit eingehen.

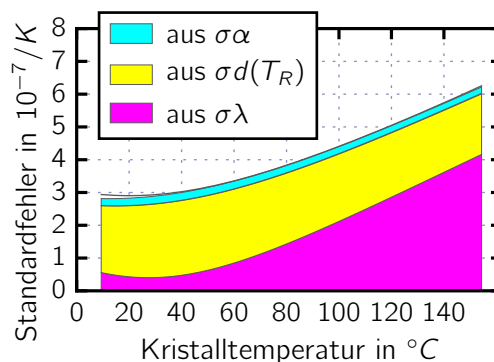
Zur Untersuchung der Reproduzierbarkeit wurden zwei Messungen unter gleichen Bedingungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 24 (a) dargestellt und decken sich sehr gut. Für die Auswertung über Peakpositionen wird dies durch Abbildung 24 (b) quantifiziert. Die Ausreißer der 1. Messung in Abbildung 24 (a) sind auf Modensprünge zurückzuführen, die in der Auswertung über Peakpositionen jedoch wirksam korrigiert wurden. Damit ist exemplarisch gezeigt, dass mit dem hier vorgestellten Messaufbau reproduzierbar gemessen werden kann.



(b) Auswertung über Peakpositionen



(c) 2. Messung, ausgewertet über Peakpositionen



Messung	Probe	λ	Polarisation	Messintervall	Auswertung
■ —	CLN	910 nm	e-pol	10 °C $\xleftarrow{-14 \text{ mK/s}}$ 160 °C	■ über Sinusfits — über Peakpositionen
● —	CLN	910 nm	e-pol	10 °C $\xleftarrow{-14 \text{ mK/s}}$ 160 °C	● über Sinusfits — über Peakpositionen

Abbildung 24: Reproduzierbarkeit und Standardfehler

(a) *thermooptischer Koeffizient zweier Messungen im Rampenmodus, durchgeführt unter gleichen Bedingungen*

(b) *Summe der Standardfehler (Fläche, blau-grün) und Betrag der Differenz der thermooptischen Koeffizienten (Linie, rot) von 1. und 2. Messung, ausgewertet über Peakpositionen*

(c) *Zusammensetzung des Standardfehlers aus den Einzelfehlern.¹⁸ Die Fehleranteile des Brechungsindex, der Temperatur und der Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ sind so klein, dass sie in dieser Darstellung nicht sichtbar wären. Sie wurden daher weggelassen*

Diskussion

Der in Abbildung 24 (c) dargestellte Standardfehler ist um zwei Größenordnungen kleiner als der jeweilige Messwert. Das bedeutet, dass der thermooptische Koeffizient auf zwei bis drei geltende Ziffern genau bestimmt werden kann.

Mit steigender Kristalltemperatur nimmt der Standardfehler deutlich zu – im dargestellten Temperaturbereich hat er sich in etwa verdoppelt. Größe und Verlauf sind typisch für die hier durchgeführten Messungen.

Ebenfalls dargestellt ist der Anteil der Fehler der Messgrößen am Standardfehler des thermooptischen Koeffizienten.¹⁸ Es wird deutlich, dass die Kristalllänge und der thermische Ausdehnungskoeffizient den größten Anteil haben. Das bedeutet, dass die Messgenauigkeit hauptsächlich durch die Änderung der geometrischen Länge und nur unwesentlich durch die Änderung des Brechungsindex bestimmt wird.

Dies macht eine prinzipielle Schwäche des in dieser Arbeit verwendeten Messverfahrens deutlich: Da der thermooptische Koeffizient und der thermische Ausdehnungskoeffizient in der gleichen Größenordnung liegen, tragen sie gemäß Gleichung (VII) ähnlich stark zur Änderung der optischen Weglänge bei. Das Messergebnis wird also in nicht unerheblichem Maße von einer Größe bestimmt, die in der Auswertung wieder „herausgerechnet“ werden muss. Es genügt daher nicht, eine sehr gute Messung der Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ durchzuführen. Für einen geringen Fehler des Endergebnisses muss auch der thermische Ausdehnungskoeffizient mit hoher Genauigkeit bekannt sein.

5.6 thermooptischer Koeffizient von kongruentem Lithiumniobat

Zur Vermessung des thermooptischen Koeffizienten kommt in diesem Abschnitt der Rampenmodus in kühlende Richtung mit einer Temperaturänderungsgeschwindigkeit von -14 mK/s zur Anwendung. Im sichtbaren Spektralbereich wurde im Abstand von etwa 10 nm vermessen, im Infraroten wurde der Abstand auf etwa 50 nm erhöht, da die Änderung des thermooptischen Koeffizienten mit der Wellenlänge hier deutlich schwächer ist. Im infraroten Idler-Zweig wurde aus ebendiesem Grund nur bei einer

¹⁸ Die Anteile wurden aus den nach der Gauß'schen Fehlerfortpflanzung gewichteten Varianzen der Einzelfehler berechnet und anschließend auf den Standardfehler des thermooptischen Koeffizienten bezogen, da in der Gauß'schen Fehlerfortpflanzungen nur die Varianzen additiv sind, der Standardfehler selber als Wurzel aus der Summe der gewichteten Varianzen hingegen nicht.

Wellenlänge gemessen. Die Messungen des Signal-Zweigs im IR wurden abweichend mit einer Geschwindigkeit von -7 mK/s und zusätzlich mit Beleuchtung durch eine Kaltlichtlampe mit einer Farbtemperatur von 3200 K und einer Lichtleistung von 1 W durchgeführt. Der SHG-verdoppelte Idler-Zweig konnte aufgrund von Problemen mit der Laserlichtquelle nicht vollständig vermessen werden. Daher fehlt leider die interessante Vergleichswellenlänge 633 nm . Alle Messungen wurden im Temperaturbereich von $160\text{ }^{\circ}\text{C}$ bis $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ durchgeführt, der Gültigkeitsbereich der Auswerteergebnisse wird jedoch um jeweils $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ eingeschränkt (vgl. Fußnote ¹⁷). Als Auswertemethode kommt die Auswertung über Peakpositionen zur Anwendung, da bei einigen Messungen eine Modensprungkorrektur nötig ist. Die Parameter der Polynomfits durch die *Peaknummern über Peakpositionen*-Graphen aller Messungen sind als Zwischenschritt der Auswertung im Anhang angegeben.

Nachfolgend sind die Standardfehler der Auswertung dargestellt. Sie entsprechen dem in Abschnitt 5.5 vorgestellten Muster. Für die zugehörigen Messwerte siehe Abbildung 26 bis 28.

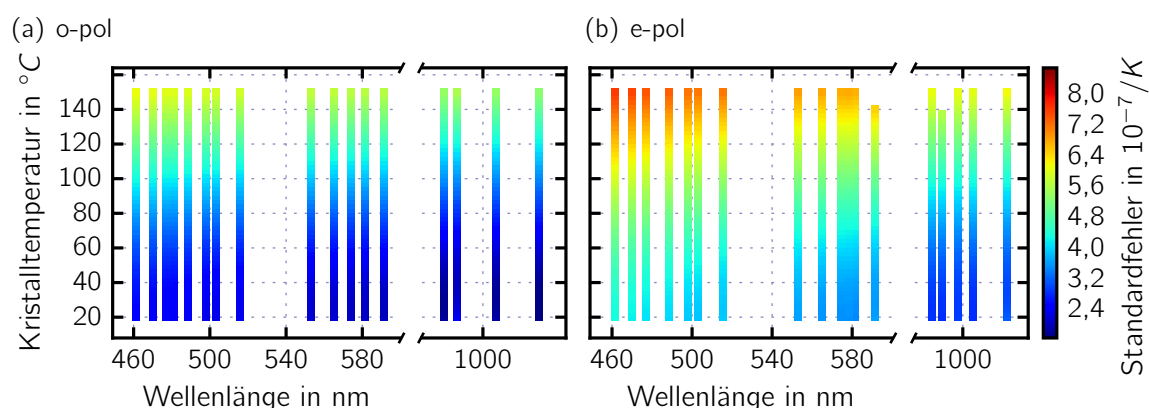


Abbildung 25: Standardfehler

Standardfehler der Auswerteergebnisse des thermooptischen Koeffizienten von CLN in ordentlicher (a) und außerordentlicher Polarisation (b). Die Auswertung erfolgte über Peakpositionen.

Um die Messdaten zusammenfassend angeben zu können soll aus ihnen eine Formel des thermooptischen Koeffizienten bestimmt werden. HOFFMANN et. al. haben dafür aus einer Sellmeiergleichung mit nur einem Oszillator eine funktionale Form abgeleitet, die den thermooptischen Koeffizienten optischer Materialien sowohl wellenlängen- als auch temperaturabhängig gut wiedergeben kann und dabei mit lediglich 6 zu schätzenden Parametern auskommt (vgl. Gleichung (XV)). Sie

wird häufig auch als *Schott-Gleichung* bezeichnet:

$$\frac{dn}{dT}(\lambda, T) = \frac{n^2(\lambda, T) - 1}{2 \cdot n(\lambda, T)} \cdot \left(D_0 + 2 \cdot D_1 \cdot (T - T_0) + 3 \cdot D_2 \cdot (T - T_0)^2 + \frac{E_0 + 2 \cdot E_1 \cdot (T - T_0)}{\lambda^2 - \lambda_0^2} \right) \quad (\text{XV})$$

Hierbei sind D_0, D_1, D_2, E_0, E_1 und λ_0 die aus einer Anpassung an die Messdaten zu schätzenden Parameter und T_0 die Bezugstemperatur der linearen Approximationen [vgl. Hoffmann u. a., 1990]. Für diese Auswertung soll als Bezugstemperatur der Mittelwert des vermessenen Temperaturintervalls (85°C) verwendet werden.

Ihre Struktur ähnelt der physikalisch motivierten Formel nach GHOSH (II). Die exzitonische Bandlücke sowie der thermische Ausdehnungskoeffizient ist jedoch jeweils durch eine Reihenentwicklung ersetzt, die Wellenlängenabhängigkeit der exzitonischen Bandlücke vernachlässigt und der Brechungsindex im Zähler des Vorfaktors nicht approximiert. Letzterer wird in einer Schott-Gleichung häufig als näherungsweise von der Temperatur unabhängig angenommen. Da für CLN jedoch eine temperaturabhängige Sellmeiergleichung vorliegt, soll dies hier nicht gemacht werden.

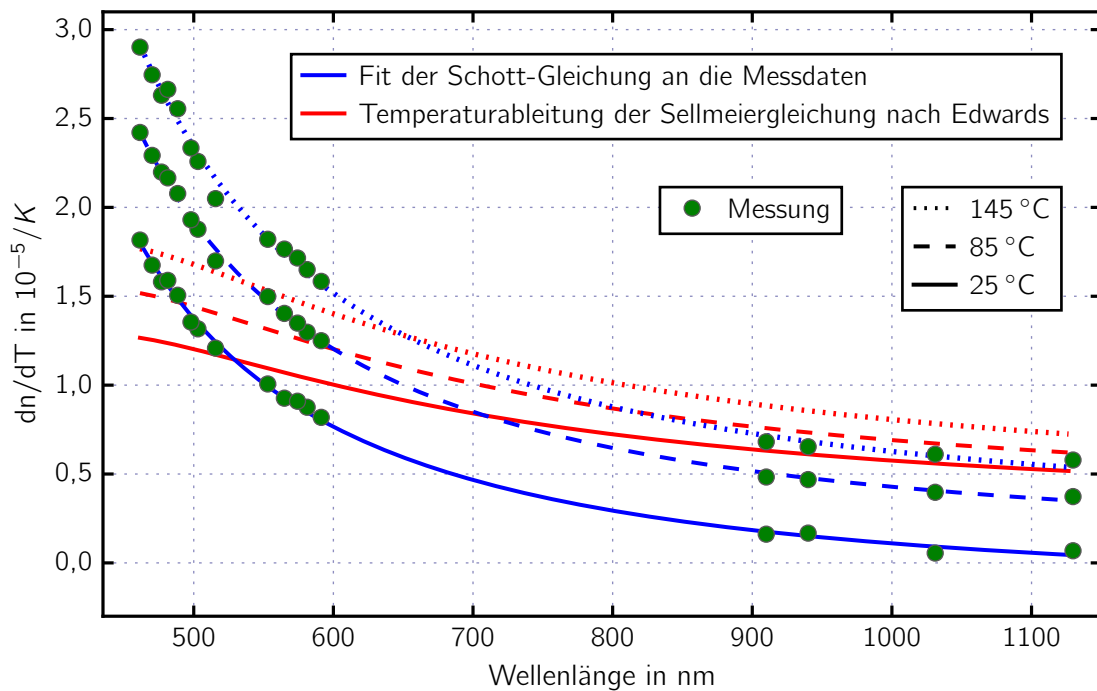
Die Koeffizienten der Anpassung der Schott-Gleichung an die in $2,5^\circ\text{C}$ -Schritten ausgewerteten Messdaten sind in Tabelle 4 angegeben und die Fitkurve, ihre Residuen und die zugehörigen Messwerte in Abbildung 26 und 27 dargestellt. Abbildung 28 zeigt zum Vergleich mit den wellenlängenabhängigen Darstellungen exemplarisch die Daten zweier Wellenlängen gegen die Temperatur aufgetragen.

	o-pol	e-pol
D_0	$(1,05 \pm 0,04) \cdot 10^{-6} \cdot K^{-1}$	$(5,145 \pm 0,008) \cdot 10^{-5} \cdot K^{-1}$
D_1	$(1,970 \pm 0,032) \cdot 10^{-8} \cdot K^{-2}$	$(8,66 \pm 0,06) \cdot 10^{-8} \cdot K^{-2}$
D_2	$(-6,21 \pm 0,26) \cdot 10^{-11} \cdot K^{-3}$	$(1,10 \pm 0,05) \cdot 10^{-10} \cdot K^{-3}$
E_0	$(3,490 \pm 0,024) \cdot nm^2 \cdot K^{-1}$	$(5,54 \pm 0,05) \cdot nm^2 \cdot K^{-1}$
E_1	$(4,07 \pm 0,07) \cdot 10^{-3} \cdot nm^2 \cdot K^{-2}$	$(6,08 \pm 0,14) \cdot 10^{-3} \cdot nm^2 \cdot K^{-2}$
λ_0	$(257,8 \pm 1,7) \cdot nm$	$(233,9 \pm 2,5) \cdot nm$

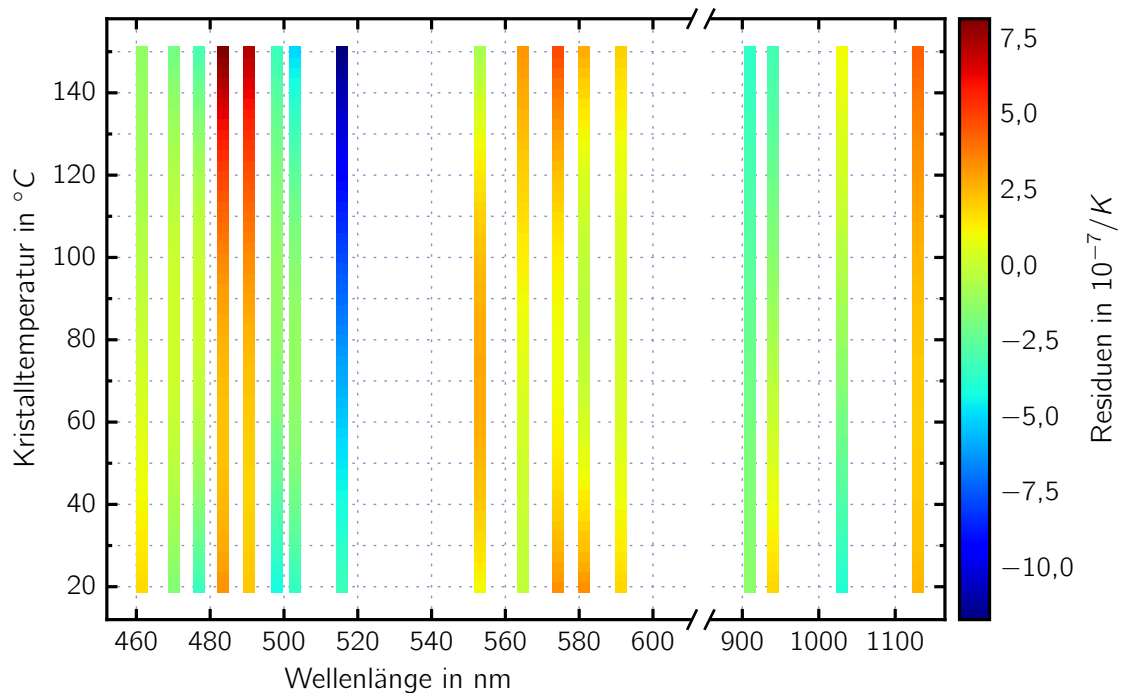
T_0	n	$[\lambda]$	$[T]$	Gültigkeitsbereich
85°C	[Edwards u. a., 1984] vgl. Tabelle 3	nm	$^\circ\text{C}$	460 nm - 1130 nm 20 $^\circ\text{C}$ - 150 $^\circ\text{C}$

Tabelle 4: Koeffizienten der Schott-Gleichung (XV) zu den Messdaten von CLN

(a) Schott-Fit und Messwerte - o-pol



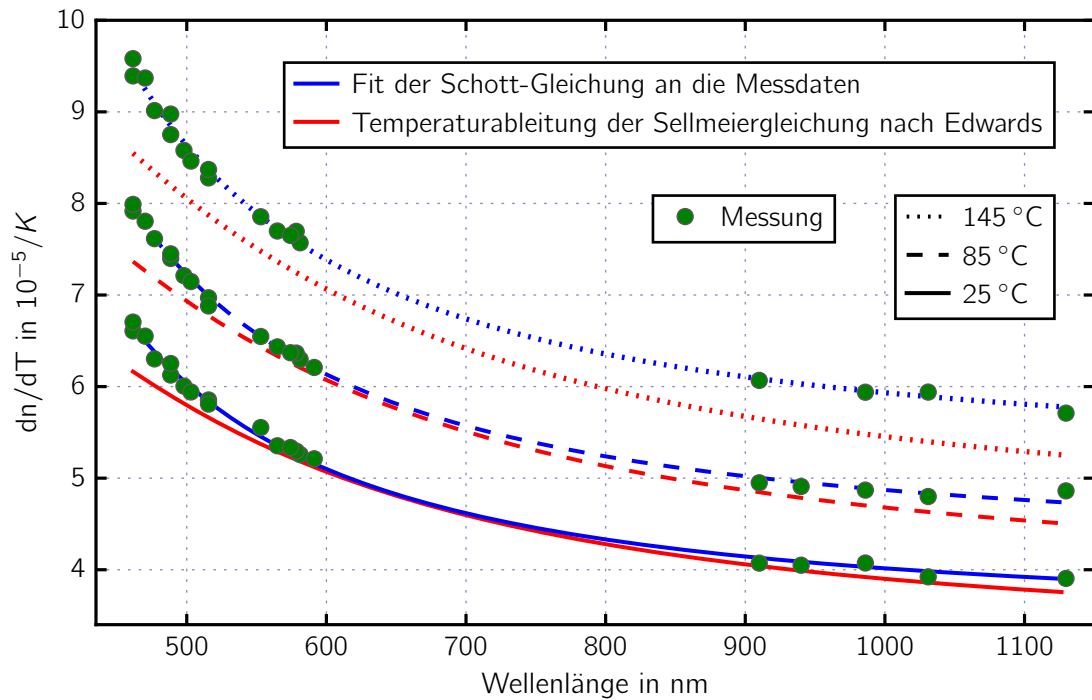
(b) Residuen des Schott-Fits - o-pol


Abbildung 26: thermooptischer Koeffizient von CLN - o-pol

(a) Messwerte des thermooptischen Koeffizienten (Kreise, grün) und Verlauf der aus ihnen ermittelten Schott-Gleichung (Linien, blau), aufgetragen über die Wellenlänge bei drei verschiedenen Kristalltemperaturen. Zum Vergleich ist der auch schon in Abbildung 2 gezeigte Verlauf des thermooptischen Koeffizienten nach EDWARDS et. al. abgebildet (Linien, rot). Er wurde durch Ableiten der Sellmeiergleichung nach der Temperatur ermittelt

(b) Residuen des Schott-Fits.

(a) Schott-Fit und Messwerte - e-pol



(b) Residuen des Schott-Fits - e-pol

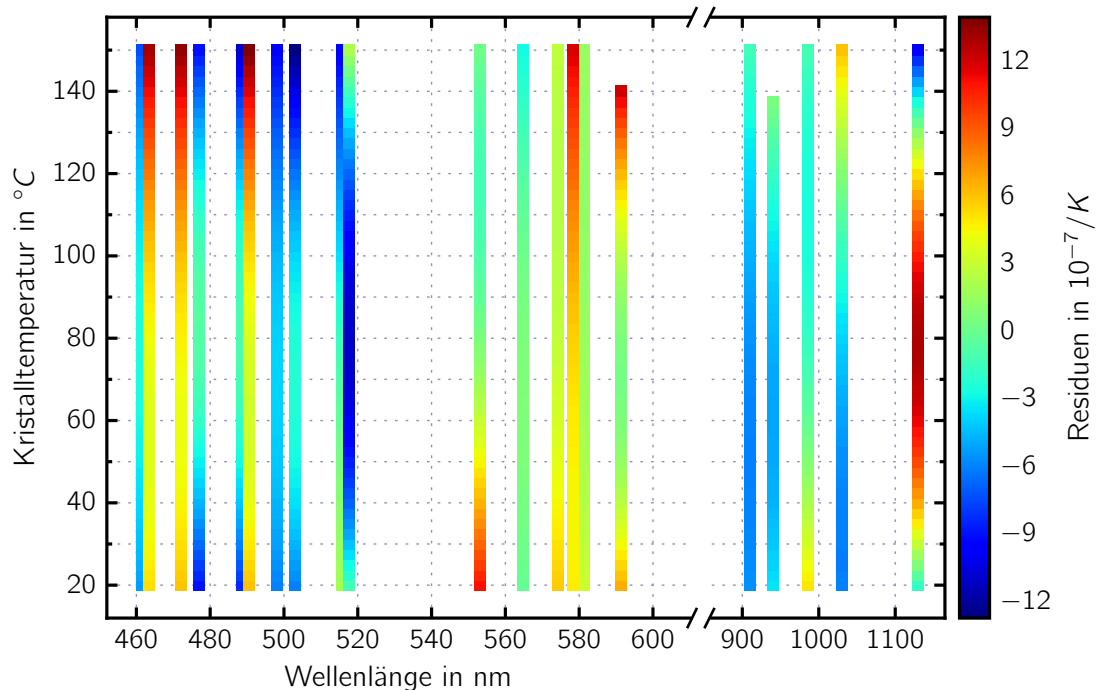


Abbildung 27: thermooptischer Koeffizient von CLN - e-pol

(a) s. Abbildung 26 (a)

(b) Residuen des Schott-Fits. Wenn zwei Messungen bei derselben Wellenlänge vorliegen, wurde einer der Residuenbalken um +3 nm verschoben, sodass beide sichtbar sind. Man beachte zudem: Zugunsten eines höheren Kontrastes ist die Farbskala in Abbildung 26 (b) anders skaliert

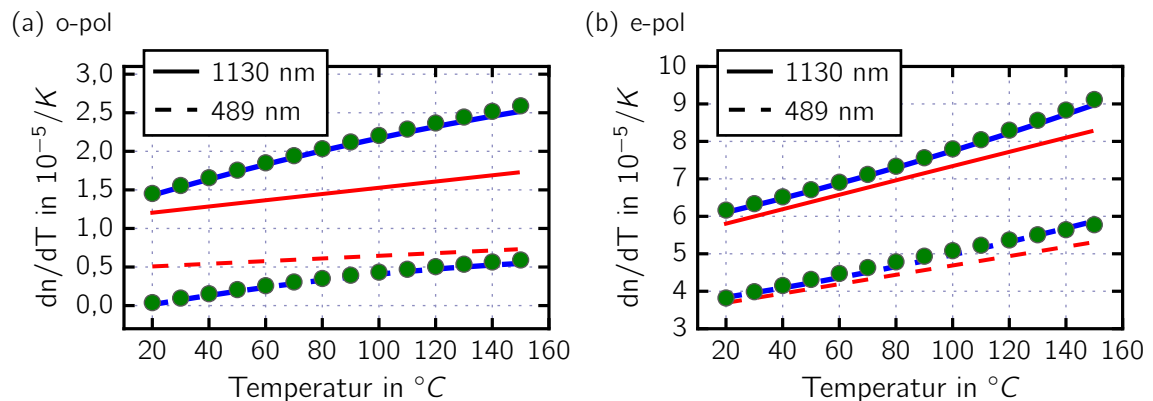


Abbildung 28: thermooptischer Koeffizient von CLN, aufgetragen über die Temperatur
Messwerte des thermooptischen Koeffizienten (Kreise, grün) und Verlauf der aus ihnen ermittelten Schott-Gleichung (Linien, blau) in ordentlicher (a) und außerordentlicher Polarisation (b), aufgetragen über die Temperatur bei zwei verschiedenen Wellenlängen. Zum Vergleich ist der Verlauf des thermooptischen Koeffizienten nach EDWARDS et. al. abgebildet (Linien, rot). Er wurde durch Ableiten der Sellmeiergleichung nach der Temperatur ermittelt

Diskussion

Der Vergleich der in Abbildung 26 (a), 27 (a) und 28 dargestellten Messdaten (Kreise, grün) mit den aus der Sellmeiergleichung nach EDWARDS et. al. ermittelten thermooptischen Koeffizienten (Linien, rot) zeigt: Größenordnung und Tendenz der Messwerte stimmen mit den in Abschnitt 2.2.1 formulierten Erwartungen überein. Quantitativ zeigen die Messdaten in ordentlicher Polarisation im Vergleich zu den Daten nach EDWARDS et. al. jedoch bereits Unterschiede in der ersten geltenden Ziffer. Im Infraroten nähert sich der gemessene thermooptische Koeffizient zudem bereits der Null. Nach dem Modell von GHOSH bedeutet dies, dass der Beitrag des thermischen Ausdehnungskoeffizienten und der exzitonischen Bandlücke zum thermooptischen Koeffizienten hier in etwa gleich groß ist (vgl. Abschnitt 2.2.1). In außerordentlicher Polarisation ist der Unterschied zwischen Messwerten und Daten nach EDWARDS et. al. geringer, nimmt mit steigender Temperatur jedoch zu.

Vergleicht man die Daten nach EDWARDS et. al. mit dem Schott-Fit, so findet sich die beste Übereinstimmung mit einem Unterschied von lediglich $1,6 \cdot 10^{-7}/K$ in außerordentlicher Polarisation bei $25^\circ C$ und 656 nm . Es kann davon ausgegangen werden, dass der thermooptische Koeffizient nach EDWARDS bei $632,8\text{ nm}$ am genauesten bestimmt ist, da die Temperaturabhängigkeit der Sellmeiergleichung aus Daten an ebendieser Wellenlänge ermittelt wurde [vgl. Smith u. a., 1976]. Wenn nun die beste Übereinstimmung mit dem Schott-Fit in der Nähe dieses Punktes liegt, spricht das

für die Qualität des Fits und folglich auch der Messwerte. Es unterstützt außerdem die Gültigkeit des Schott-Fits in dem 300 nm breiten Intervall zwischen VIS und IR, in dem keine Messwerte vorliegen. Folgt man dieser Argumentation, so verwundert allerdings, dass der aus dem Schott-Fit berechnete thermooptische Koeffizient um 633 nm mit steigender Temperatur immer stärker von den Daten nach EDWARDS et. al. abweicht.

Betrachtet man die Messungen im SHG-verdoppelten Idler-Zweig näher, so lassen sich Anzeichen für einen systematischen Fehler erkennen:

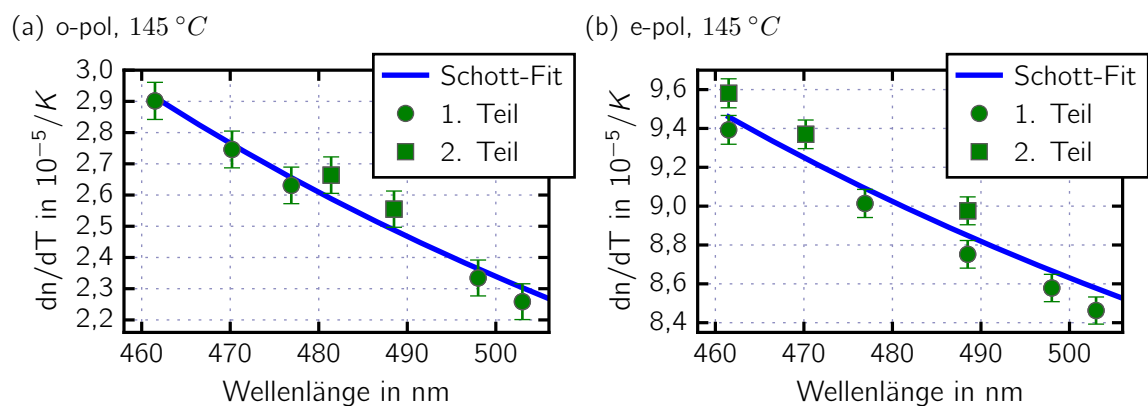


Abbildung 29: systematischer Fehler

Ausschnitt des gemessenen thermooptischen Koeffizienten inklusive Standardfehlerbalken (Punkte, grün) und des Schott-Fits (Linie, blau) im SHG-verdoppelten Idler-Zweig in ordentlicher (a) und außerordentlicher Polarisation (b) bei einer Kristalltemperatur von 145°C . Die Daten des 2. Teils (Quadrate) wurden alle unter derselben Laborbuchnummer notiert. Daraus schließe ich, dass der Messaufbau währenddessen unangetastet blieb. Die Daten des 1. Teils (Kreise) tragen hingegen verschiedene Laborbuchnummern.

Abbildung 29 zeigt zwei Messteile, die zueinander einen konstanten Versatz von etwa $1 \cdot 10^{-6}/K$ für e-pol beziehungsweise $5 \cdot 10^{-7}/K$ für o-pol aufzuweisen scheinen. Dieser Unterschied ist auch gut im jeweiligen Residuengraph des Schott-Fits zu erkennen (vgl. Abbildung 26 (b) und 27 (b)). Er ist jeweils größer als der Standardfehler der Messwerte und bedarf daher einer Diskussion.

Ich vermute, dass dieser Versatz auf einen systematischen Fehler hinweist. Unterstützt wird die Vermutung dadurch, dass der 2. Messteil vollständig unter einer Laborbuchnummer notiert wurde und daher mit großer Sicherheit durchgeführt wurde, ohne dass an den Messaufbau Hand angelegt wurde. Möglich ist, dass zwischen 1. und 2. Messteil ein unbekannter Einflussparameter im Messaufbau verstellt wurde. Beispielsweise könnte der Kristall aus dem Ofen genommen, geputzt, wieder eingesetzt

und das Interferenzmuster neu auf die Signaldiode einjustiert worden sein. Dies kann allerdings nicht mehr rekonstruiert werden, da ich nicht davon ausgegangen bin, dass dies (oder etwas Ähnliches) einen Einfluss auf die Messung haben könnte und es daher nicht notiert habe.

Alle bekannten Einflussparameter sind für 1. und 2. Messteil gleich. Daher liegt kein Argument vor, einen der beiden Messteile zu bevorzugen. Ich habe deshalb trotz des vermutlich systematischen Fehlers die Messdaten beider Teile für die Durchführung des Schott-Fit verwendet.

Sollte der systematische Fehler tatsächlich auf das Ein- und Ausbauen des Kristalls oder das Nachjustieren des Interferenzmusters zurückzuführen sein, wäre sowohl die Vergleichbarkeit der mit verschiedenen Zweigen des OPOs als auch mit verschiedenen Proben (vgl. Abschnitt 5.7) durchgeführten Messungen in Frage gestellt. Es wurden nämlich in einem Zweig des OPOs zunächst alle Proben vermessen, und erst danach sein Spiegelsatz auf einen neuen Wellenlängenbereich umgerüstet.

Bei den Messwerten des Signal-Zweigs im IR ist die Situation umgekehrt: Es ist bekannt, dass sie unter anderen Bedingungen als die restlichen Messwerte aufgenommen wurden, allerdings ist in der Auswertung weder im Graph der Messdaten noch bei den Residuen eine systematische Abweichung zu erkennen. Dies könnte daran liegen, dass, anders als bei den in Abbildung 29 vorgestellten Daten, keine Mehrfachmessungen bei einer Wellenlänge vorliegen. Ich vermute allerdings, dass kein Unterschied erkennbar ist, da die Messbedingungen gleichwertig sind. Wie in Abschnitt 5.3 ausgeführt, verhindert die Kaltlichtlampe einen Teil des Drifts bei mittleren Temperaturen. Für hohe und niedrige Temperaturen macht sie keinen Unterschied. Da im Rampenmodus in global kühlende Richtung ein solcher Drift auch ohne Kaltlichtlampe schon nicht erkennbar ist, sollte der Einfluss der Kaltlichtlampe vernachlässigbar sein. In Bezug auf die Rampengeschwindigkeit wurden Vergleichsmessungen durchgeführt, die im Auswerteergebnis keinen Unterschied zwischen -7mK/s und -14mK/s zeigten.

Die Residuen liegen in der gleichen Größenordnung wie die Standardfehler der Auswerteergebnisse und sind zum Teil sogar etwas größer als diese. Der Schott-Fit befindet sich somit nicht immer im Fehlerintervall der Einzelmessungen. Betrachtet man die Residuenplots in Abbildung 26 (b) und 27 (b), so fällt außerdem auf, dass ca. die Hälfte der Residuen sich in etwa symmetrisch zu einer mittleren Temperatur verhalten, das heißt, die Abweichung des Schott-Fits von den Messwerten bei kleinen und großen Temperaturen besonders groß ist, bei mittleren hingegen gering. Da ebenfalls

bei mittleren Temperaturen der in Abschnitt 5.3 vorgestellte Drifteffekt beobachtet wurde, könnte dies ein Anzeichen dafür sein, dass der Drift entgegen der bisherigen Annahme noch nicht vollständig abgeklungen ist. Es könnte allerdings auch lediglich darauf zurückzuführen sein, dass die Bezugstemperatur des Schott-Fits bei $85\text{ }^{\circ}\text{C}$ liegt.

Für die Qualität des Schott-Fits spricht, dass die Standardabweichungen der Koeffizienten jeweils zwei Größenordnungen kleiner als ihr Koeffizient sind (vgl. Tabelle 4).

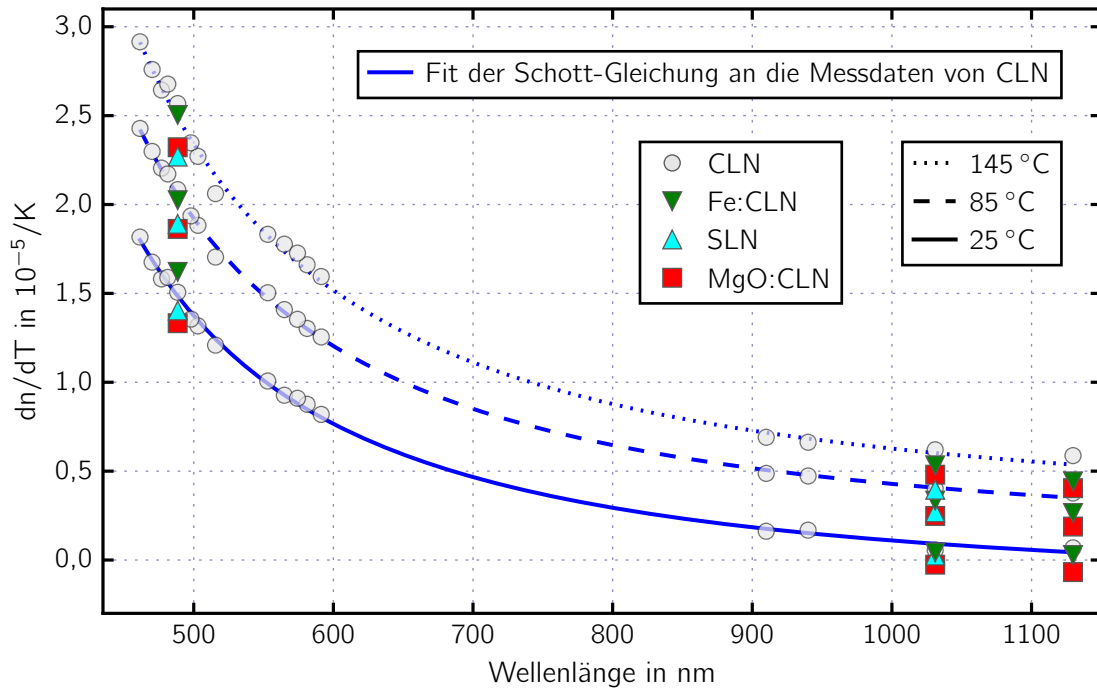
Die diskutierten möglichen Fehler der Messung sind im Vergleich zum Unterschied zwischen Schott-Fit und dem thermooptischen Koeffizienten nach EDWARDS et. al. jedoch klein. Daher darf die Behauptung aufgestellt werden, dass das Ziel der Messungen, eine gegenüber den bisher in der Praxis verwendeten Werten verbesserte Darstellung des thermooptischen Koeffizienten zu erhalten, für kongruentes Lithiumniobat erfüllt worden ist. Eine Überprüfung dieser Behauptung durch die erfolgreiche Anwendung des Schott-Fits in der Praxis muss allerdings noch erbracht werden.

5.7 Vergleich mit dotiertem sowie stöchiometrischem Lithiumniobat

Abschließend sollen die in Abschnitt 5.6 vorgestellten Ergebnisse für kongruentes Lithiumniobat mit Messungen an kongruent dotiertem (MgO:CLN , Fe:CLN) sowie stöchiometrischem Lithiumniobat (SLN) verglichen werden. Die Vergleichsmessungen wurden bei den Wellenlängen 489 nm , 1031 nm und 1130 nm unter sonst gleichen Bedingungen wie in Abschnitt 5.6 durchgeführt. Im SHG-verdoppelten Idler-Zweig des OPOs hätte zudem bei 633 nm gemessen werden sollen. Aufgrund von Problemen mit der Laserlichtquelle fehlen diese Messungen jedoch. Ebenso fehlt die Vergleichsmessung bei 1130 nm für SLN .

Nachfolgend werden die Ergebnisse für die drei Proben Fe:CLN , SLN und MgO:CLN analog zu den Abbildungen 26 (a) und 27 (a) gegen die Wellenlänge aufgetragen präsentiert (vgl. Abbildung 30 (a) und 31 (a)). Da nur bei drei verschiedenen Wellenlängen gemessen wurde, ist es zudem möglich, die kompletten Ergebnisse ohne allzu große Unübersichtlichkeit auch gegen die Temperatur aufzutragen. Anstelle des thermooptischen Koeffizienten selbst wird jedoch die Differenz des thermooptischen Koeffizienten der drei Proben zum Schott-Fit an die Daten von CLN aus Abschnitt 5.6 gezeigt (vgl. Abbildung 30 (b), 31 (b) und 32).

(a) Messwerte und Schott-Fit - o-pol



(b) Differenz zum Schott-Fit - o-pol

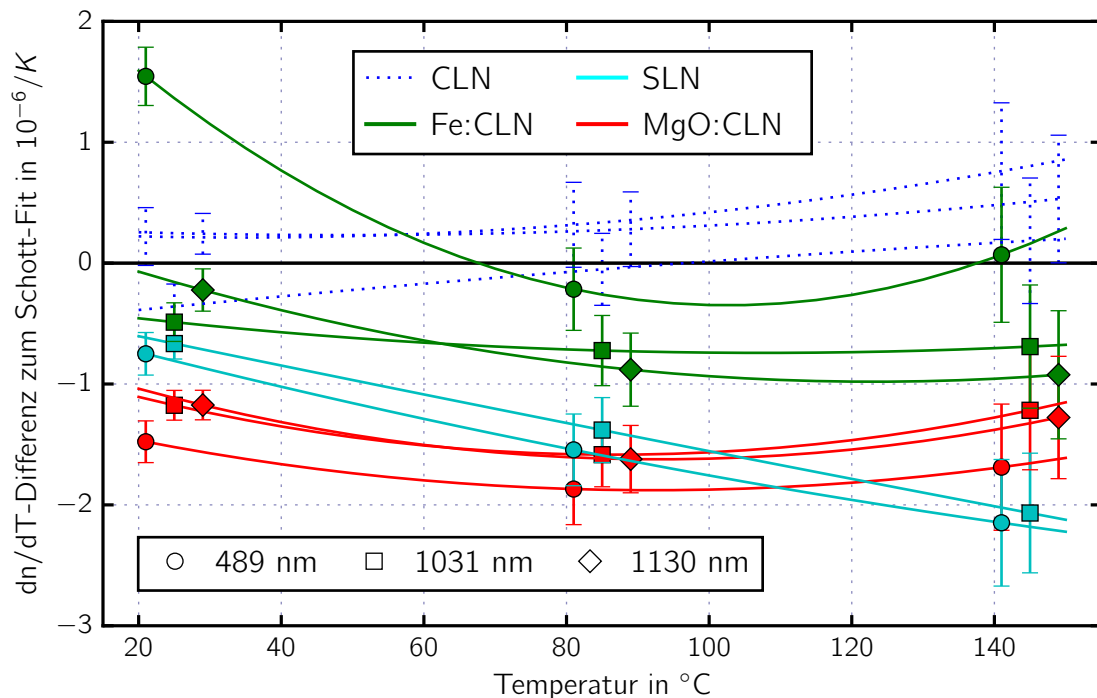
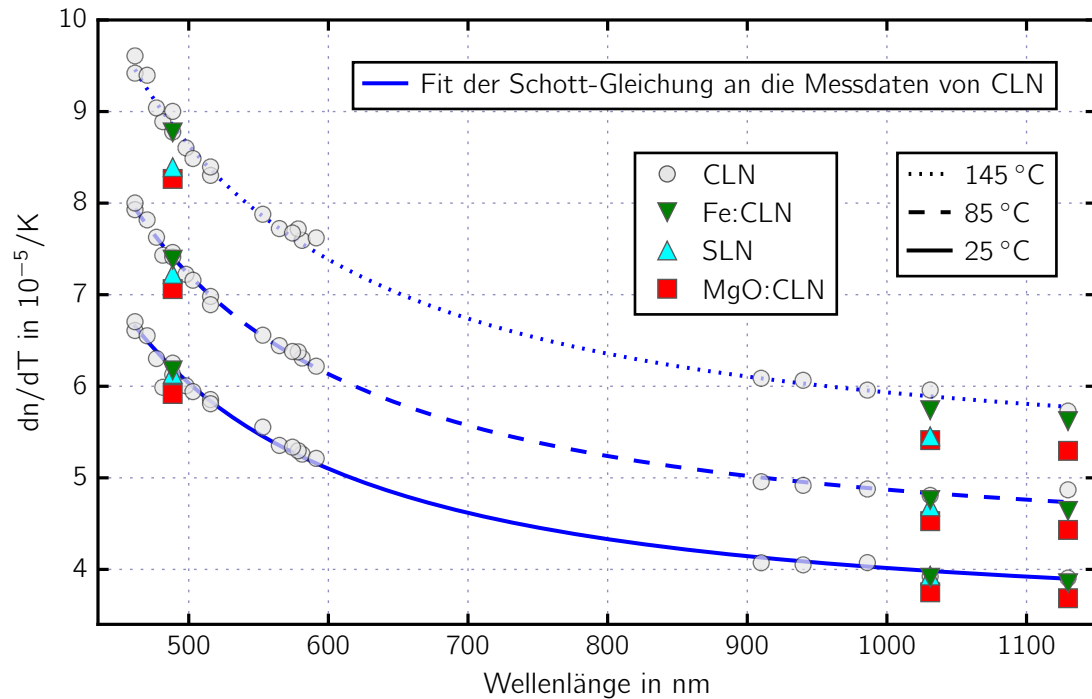


Abbildung 30: thermooptischer Koeffizient der Proben MgO:CLN, Fe:CLN und SLN - o-pol
 (a) Messwerte des thermooptischen Koeffizienten von Fe:CLN (Dreiecke, Spitze nach unten, grün), SLN (Dreiecke, Spitze nach oben, cyan) sowie MgO:CLN (Quadrate, rot), aufgetragen über die Wellenlänge bei drei verschiedenen Kristalltemperaturen. Zum Vergleich sind außerdem die Messdaten für CLN aus Abschnitt 5.6 (Kreise, grau) sowie der Verlauf des Schott-Fits an die Messdaten von CLN (Linien, blau) dargestellt
 (b) s. Abbildung 31 (b)

(a) Messwerte und Schott-Fit - e-pol



(b) Differenz zum Schott-Fit - e-pol

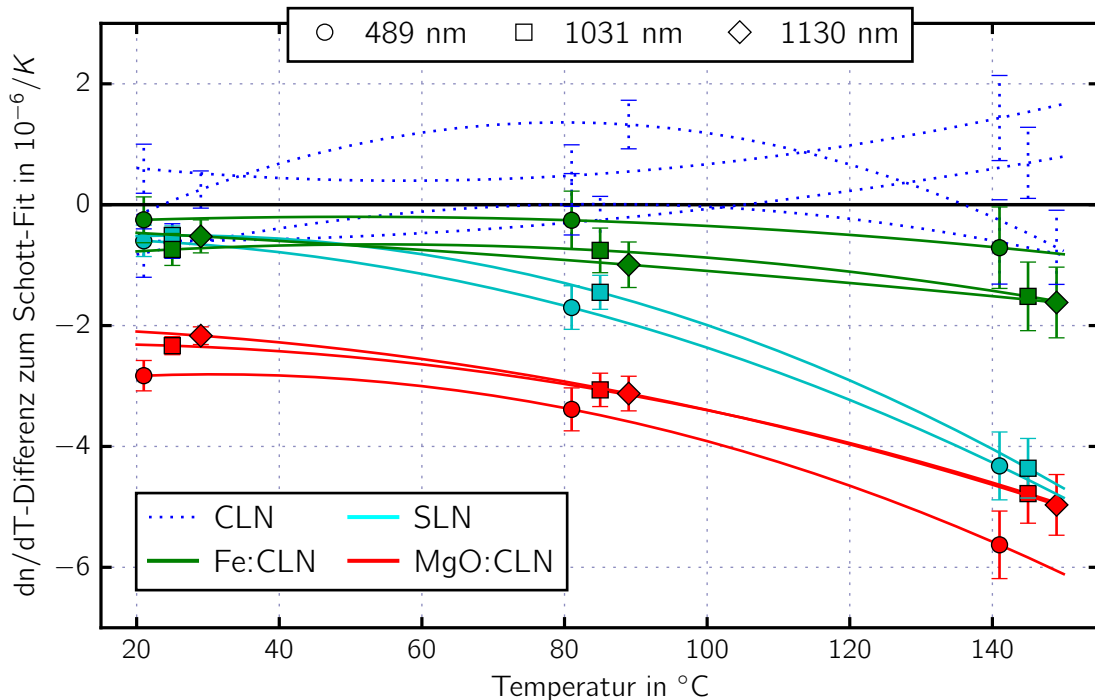


Abbildung 31: thermooptischer Koeffizient der Proben MgO:CLN, Fe:CLN und SLN - e-pol

(a) s. Abbildung 30 (a)

(b) Differenz des thermooptischen Koeffizienten der drei Proben zum Schott-Fit für CLN. Eine positive Differenz bedeutet, dass der thermooptische Koeffizient der Probe größer als derjenige des Schott-Fits ist. Zum Vergleich der Größenordnung sind zudem jeweils drei Standardfehlerbalken des thermooptischen Koeffizienten (nicht der Differenz!) und als Maß für die Streuung zusätzlich die Residuen des Schott-Fits (blau, gepunktet) eingezeichnet

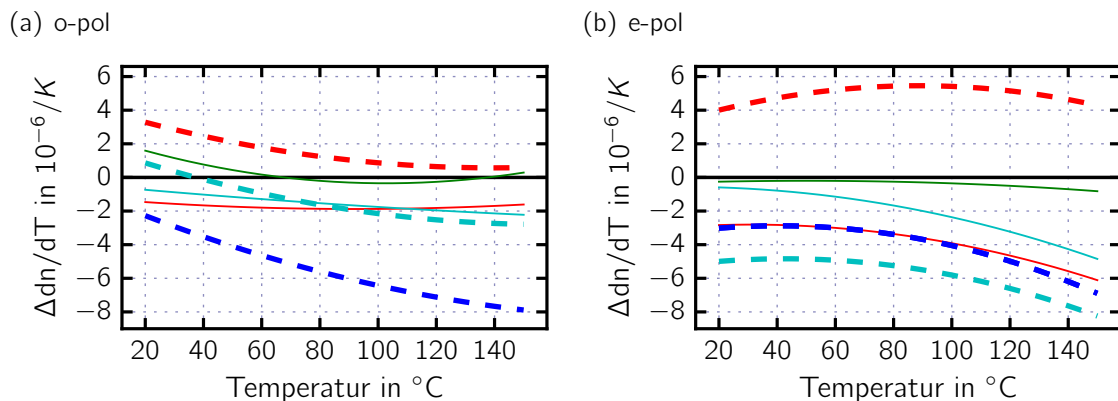


Abbildung 32: Vergleich mit dem thermooptischen Koeffizienten, abgeleitet aus der Sellmeiergleichung der jeweiligen Probe

Zusätzlich zu den bereits in Abbildung 30 (b) und 31 (b) dargestellten Differenzen der Messergebnisse zum Schott-Fit (dünne, durchgezogene Linien) ist hier exemplarisch für 488 nm auch noch die Differenz des thermooptischen Koeffizienten, berechnet aus den Sellmeiergleichungen nach SHEN et. al. (MgO:CLN, rot), EDWARDS et. al. (CLN, Fe:CLN, blau) bzw. JUNDT et. al (SLN, cyan), zum Schott-Fit (dicke, gestrichelte Linien) in ordentlicher (a) bzw. außerordentlicher Polarisierung (b) dargestellt. Die Farbkodierung bezieht sich auf die Proben und ist die gleiche wie in Abbildung 30 und 31

Für beide Polarisationsrichtungen sind die thermooptischen Koeffizienten der drei Vergleichsproben um bis zu $-2 \cdot 10^{-6}$ bzw. $-6 \cdot 10^{-6}$ tendenziell kleiner als derjenige des Schott-Fits. Der Unterschied zum Schott-Fit ist für die eisendotierte Probe am kleinsten und für die mit Magnesiumoxid dotierte am größten. Die Differenz zum Schott-Fit bezogen auf den thermooptischen Koeffizienten der Vergleichsprobe beträgt in außerordentlicher Polarisierung maximal 8%, in ordentlicher Polarisierung ist sie deutlich größer. Zum Teil ist der prozentuale Wert dort allerdings keine sinnvolle Kennzahl mehr, da der thermooptische Koeffizient in ordentlicher Polarisierung bei geringer Temperatur und großer Wellenlänge der Null bereits sehr nah kommt.

Diskussion

Der Unterschied des thermooptischen Koeffizienten¹⁹ zwischen Messungen derselben Probe bei verschiedenen Wellenlängen ist nicht größer als die jeweilige Standardabweichung des zugehörigen thermooptischen Koeffizienten, der Unterschied des thermooptischen Koeffizienten zweier verschiedener Proben hingegen schon (vgl.

¹⁹ Da der Subtrahend der in Abbildung 30 (b), 31 (b) und 32 dargestellten Differenzen immer der gleiche ist (nämlich der Wert des Schott-Fits), kann an diesen Abbildungen aus dem vertikalen Abstand zweier Differenzen außerdem direkt die Differenz der thermooptischen Koeffizienten der zu den beiden Linien gehörigen Messungen abgelesen werden.

Abbildung 30 (b) und 31 (b)). Dies spricht dafür, dass der erkennbare Unterschied zwischen den Proben auf Dotierung und Stöchiometrie und nicht auf eine Streuungen der Messungen zurückzuführen ist. Unterstützt wird dies durch die im Vergleich zum Unterschied der Proben geringe Größe der Residuen des Schott-Fits.

Die Differenz der aus den jeweiligen Sellmeiergleichungen berechneten thermooptischen Koeffizienten zum Schott-Fit sind deutlich größer als diejenigen der gemessenen thermooptischen Koeffizienten zum Schott-Fit (vgl. Abbildung 32). Zwischen den errechneten und gemessenen Differenzen einer Probe ist jeweils keine Korrelation erkennbar. Dies ist jedoch darauf zurückzuführen, dass die verwendeten Sellmeiergleichungen aus Messungen des absoluten Brechungsindex mit einer Genauigkeit von

$$\pm 5 \cdot 10^{-5} \quad [\text{Smith u. a., 1976, CLN, Fe:CLN}]$$

$$\pm 1 \cdot 10^{-4} \quad [\text{Shen u. a., 1992, MgO:CLN}]$$

$$\text{bzw.} \quad \pm 4 \cdot 10^{-4} \quad [\text{Jundt u. a., 1990, SLN}]$$

hergeleitet wurden. Der thermooptische Koeffizient als ihre Ableitung kann daher keine höhere Genauigkeit aufweisen. Die in Abbildung 32 erkennbare Streuung der berechneten thermooptischen Koeffizienten liegt somit im Rahmen ihrer Genauigkeit und schmälert die Gültigkeit der Messungen an den drei Vergleichsproben nicht.

Daraus folgt, dass auch die hier vorgestellten Vergleichsmessungen eine Verbesserung gegenüber den bisher in der Praxis verwendeten Werten darstellen.

6 Fazit und Ausblick

In dieser Arbeit ist eine interferometrische Messmethode vorgestellt worden, mit der der thermooptische Koeffizient optischer Kristalle mit einer Genauigkeit von mindestens $1 \cdot 10^{-6}/K$ bestimmt werden kann. Die Auswertung wurde anhand zwei verschiedener Methoden demonstriert. Für eventuell auftretende Modensprünge der Laserlichtquelle wurde eine Korrektur eingeführt.

Als potentielle Einflussgrößen bei der Messung an Lithiumniobat wurden der pyroelektrische Effekt, der photorefraktive Effekt sowie der elastooptische Effekt diskutiert und weitestgehend ausgeschlossen. Weitere Vergleichsmessungen zur Überprüfung wurden vorgeschlagen. Dies sind insbesondere eine Shuttermessung mit einem Helium-Neon-Laser zum sicheren Ausschluss des photorefraktiven Effekts und eine Messung zur Überprüfung des Einflusses eines räumlichen Temperaturgradienten mit aktiv temperiertem Deckel zur Unterdrückung desselben.

Ein im Verlauf der Messungen ab circa 60°C auftretender Drifteffekt wurde beschrieben, seine Ursache jedoch noch nicht vollständig verstanden. Erklärungsansätze über einen tertiär pyroelektrischen Effekt sowie einer Überlagerung von zwei unterschiedlichen Drifteffekten in Lithiumniobat wurden vorgeschlagen. Es wurde angenommen, dass der Drift im Rampenmodus in kühlende Richtung bei einer Geschwindigkeit von -14mK/s nicht auftritt oder vernachlässigbar klein ist. Diese Annahme ist essentiell für die Gültigkeit der Messungen dieser Arbeit und sollte daher mit einem tieferen Verständnis der Ursachen des Drifts überprüft werden.

Das Kernstück des experimentellen Teils dieser Arbeit ist die Ermittlung einer Schott-Gleichung des thermooptischen Koeffizienten von kongruentem Lithiumniobat. Sie zeigt insbesondere in ordentlicher Polarisierung eine deutliche Abweichung zu den bisher in der Praxis verwendeten, durch Ableiten der temperaturabhängigen Sellmeiergleichung ermittelten Werten und stellt damit voraussichtlich eine wesentliche Verbesserung dar. Die thermooptischen Koeffizienten von dotiertem und stöchiometrischem Lithiumniobat wurden an ausgewählten Wellenlängen ebenfalls vermessen und sind mit einer Abweichung in der zweiten geltenden Ziffer jeweils etwas kleiner als derjenige von kongruentem Lithiumniobat.

Eine Überprüfung der Qualität der Schott-Gleichung durch präzise Vorhersage der korrekten Dimensionierung der Elemente von aus kongruentem Lithiumniobat hergestellten optischen Systemen ist der nächste Schritt.

Abkürzungsverzeichnis

3D	dreidimensional
bzw.	beziehungsweise
ca.	circa
CLN	kongruente, undotierte Lithiumniobatprobe
engl.	englisch
et. al.	und andere
e-pol	außerordentlich polarisiert
evt.	eventuell
f. / ff.	folgende
Fe:CLN	mit Eisen dotierte, kongruente Lithiumniobatprobe
Ggw.	Gleichgewichtsmodus
IPM	Institut für Physikalische Messtechnik
IR	infraroter Spektralbereich
LiNbO ₃	Lithiumniobat
NIR	nahinfraroter Spektralbereich
MgO:CLN	mit Magnesiumoxid dotierte, kongruente Lithiumniobatprobe
OPO	optisch parametrischer Oszillator
o-pol	ordentlich polarisiert
PID-Regler	Proportional-Integral-Differential-Regler
Pol.	Polarisation
S.	Seite
s.	siehe
SHG	secong harmonic generation, zu deutsch: Frequenzverdopplung
SLN	stöchiometrische Lithiumniobatprobe
u. a.	und andere
UV	ultravioletter Spektralbereich
vgl.	vergleiche
VIS	sichtbarer Spektralbereich
z. B.	zum Beispiel

Symbolverzeichnis

$3m$	ditrigonal-pyramidale Punktgruppe, verkürzte Hermann-Mauguin-Notation
$\bar{3}m$	ditrigonal-skalenoedrische Punktgruppe, verkürzte Hermann-Mauguin-Notation
α	thermischer Ausdehnungskoeffizient
α_S	thermischer Ausdehnungskoeffizient an der Stütztemperatur T_S
A_1, A_2, A_3, A_4	
B_1, B_2, B_3	Koeffizienten der Sellmeiergleichung (XIII)
C_1	
d	Länge des vermessenen Kristalls in Richtung des Strahlverlaufs
ΔT	Temperaturänderung
$\Delta T_{2\pi}$	Periodenlänge des gegen die Temperatur aufgetragenen, sinusförmigen Verlaufs des normierten Signals; Temperaturänderung, aufgrund der das Interferenzmuster vor dem Pinhole um genau zwei Extrema „wandert“
dn/dT	thermooptischer Koeffizient
dn^*/dT	potentiell verfälschter thermooptischer Koeffizient
D_0, D_1, D_2	
E_0, E_1	Koeffizienten der Schott-Gleichung (XV)
λ_0	
E_{eg}	exzitonische Bandlücke
E_z	elektrisches Feld entlang der z-Achse
$E_{z,pyro}$	elektrisches Feld entlang der z-Achse, verursacht durch den pyroelektrischen Effekt
ε	Winkel zwischen einfallendem Strahl und Lot auf der Oberfläche des vermessenen Kristalls

ε_0	elektrische Feldkonstante
ε_{33}	Komponente des Tensors der relativen Permittivität
F	Temperaturabhängigkeit der Sellmeiergleichung (XIII)
L	optische Weglänge
l	geometrische Weglänge
l_S	geometrische Länge an der Stütztemperatur T_S
λ	Vakuumwellenlänge
λ_{ig}	zur Energie der isentropen Bandlücke korrespondierende Wellenlänge
n_e	außerordentlicher Brechungsindex
n_o	ordentlicher Brechungsindex
n_x, n_y, n_z	Brechungsindex entlang der x-, y- bzw. z-Achse des Kristalls
n_∞	statischer Brechungsindex
\wp_3	Komponente des pyroelektrischen Tensors
r_{13}, r_{33}	Komponenten des linear elektrooptischen Tensors in verkürzter Schreibweise
σ	Standardfehler
τ	Zeitkonstante des exponentiellen Abklingens des Drifts
T	Temperatur
T_0	Bezugstemperatur in der Schottgleichung (XV) und der Sellmeiergleichung (XIII)
T_R	Raumtemperatur
T_S	Stütztemperatur der linearen Approximation des thermooptischen Koeffizienten

Abbildungsverzeichnis

1	piezoelektrische und ferroelektrische Phase von Lithiumniobat	3
2	thermooptischer Koeffizient - theoretischer Verlauf	7
3	Interferometer	11
4	schematische Darstellung des Messaufbaus	16
5	Polarisationsdreher über drei Spiegel	16
6	Ofen mit Halterung	17
7	Interferenzmuster	20
8	typische Messgraphen	21
9	Gleichgewichtsmodus	22
10	Modensprung im Gleichgewichtsmodus	23
11	Auswertemethoden im Rampenmodus	24
12	Modensprungkorrektur in der Auswertung über Peakpositionen	26
13	Vergleich von Rampen- und Gleichgewichtsmodus	30
14	Ausschluss des photorefraktiven Effekts	32
15	Ausschluss mechanischer Spannungen durch die Halterung	34
16	Ausschluss eines Einflusses des räumlichen Temperaturgradienten . .	36
17	Signaldrift bei konstanter Kristalltemperatur	39
18	Aufspaltung des heizenden und kühlenden Astes	40
19	Messung mit Kaltlichtlampe	40
20	Abklingverhalten des Drifts	41
21	Hysteresis-Effekt	43
22	Hysteresis im Rampenmodus	44
23	Amplitudenschwankung	48
24	Reproduzierbarkeit und Standardfehler	50
25	Standardfehler der Messungen an CLN	52
26	thermooptischer Koeffizient von CLN - o-pol	54
27	thermooptischer Koeffizient von CLN - e-pol	55
28	thermooptischer Koeffizient von CLN, aufgetragen über die Temperatur	56
29	systematischer Fehler	57
30	thermooptischer Koeffizient von MgO:CLN, Fe:CLN und SLN - o-pol	60
31	thermooptischer Koeffizient von MgO:CLN, Fe:CLN und SLN - e-pol	61
32	Vergleich mit dem thermooptischen Koeffizienten, abgeleitet aus der Sellmeiergleichung der jeweiligen Probe	62

Literaturverzeichnis

Breer, S. und K. Buse (1998).

“Wavelength demultiplexing with volume phase holograms in photorefractive lithium niobate”.

In: *Applied Physics B: Lasers and Optics* 66.3, S. 339–345.

DOI: 10.1007/s003400050398

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 47).

Buse, K. (1997).

“Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals I: Models and experimental methods”.

In: *Applied Physics B: Lasers and Optics* 64.3, S. 273–291.

DOI: 10.1007/s003400050175

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 9).

Centronic (2013).

General Purpose Silicon Sensors (Series 5T).

URL: http://www.centronic.co.uk/blue_enhanced.htm (zuletzt aufgerufen am 21.08.2014)

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 20).

Davis, J. R., Hrsg. (1993).

Aluminum and aluminum alloys.

ASM specialty handbook.

Materials Park und Ohio: ASM International

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 37).

Edwards, G. J. und M. Lawrence (1984).

“A temperature-dependent dispersion equation for congruently grown lithium niobate”.

In: *Optical and Quantum Electronics* 16.4, S. 373–375.

DOI: 10.1007/BF00620081

(In dieser Arbeit zitiert auf den Seiten 6, 7, 9, 28, 29, 53).

Ghosh, G. (1994).

“Thermo-optic coefficients of LiNbO₃, LiIO₃, and LiTaO₃ nonlinear crystals”.

In: *Optics Letters* 19.18, S. 1391.

DOI: 10.1364/OL.19.001391

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 6).

– (1998).

Handbook of optical constants of solids.

San Diego und California [u.a.]: Academic Press

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 6).

Grazulis, S., A. Daskevicius, A. Merkys, D. Chateigner, L. Lutterotti, M. Quiros, N. R. Serebryanaya, P. Moeck, R. T. Downs und A. Le Bail (2011).

“Crystallography Open Database (COD): an open-access collection of crystal structures and platform for world-wide collaboration”.

In: *Nucleic Acids Research* 40.D1, S. D420–D427.

DOI: 10.1093/nar/gkr900

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 3).

Grousseau, R., M. Henry, S. Mallick und S. L. Xu (1983).

“Measurement of bulk photovoltaic and photorefractive characteristics of iron doped LiNbO₃”.

In: *Journal of Applied Physics* 54.6, S. 3012.

DOI: 10.1063/1.332504

(In dieser Arbeit zitiert auf den Seiten 10, 33).

Hoffmann, H. J., W. W. Jochs, G. Westenberger und A. J. Marker III (1990).

“Dispersion formula for the thermo-optic coefficient of optical glasses”.

In: *San Diego - DL Tentative.*

SPIE Proceedings,

S. 219–230.

DOI: 10.1117/12.22537

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 53).

Hsu, R., E. N. Maslen, D. Du Boulay und N. Ishizawa (1997).

“Synchrotron X-ray Studies of LiNbO₃ and LiTaO₃”.

In: *Acta Crystallographica Section B Structural Science* 53.3, S. 420–428.

DOI: 10.1107/S010876819600777X

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 3).

Hu, X. und H. Wang (1987).

“The optical anomalies in LiNbO₃ Crystals”.

In: *Ferroelectrics* 75.1, S. 109–116.

DOI: 10.1080/00150198708008215

(In dieser Arbeit zitiert auf den Seiten 10, 47).

Hunter, J. D. (2007).

“Matplotlib: A 2D Graphics Environment”.

In: *Computing in Science & Engineering* 9.3, S. 90–95.

DOI: 10.1109/MCSE.2007.55

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 7).

Iwasaki, H., H. Toyoda, N. Niizeki und H. Kubota (1967).

“Dispersion of the Refractive Indices of LiNbO₃ Crystal between 20 °C and 900 °C”.

In: *Japanese Journal of Applied Physics* 6.9, S. 1101–1104.

DOI: 10.1143/JJAP.6.1101

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 6).

JUMO (2014).

Aufbau und Anwendung von Platin-Temperatursensoren.

URL: http://www.jumo.de/media/PDFs/Support_Download/product_archive/t90.6000d.pdf (zuletzt aufgerufen am 15.09.2014)

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 18).

Jensen, O. B., P. E. Andersen, B. Sumpf, K.-H. Hasler, G. Erbert und P. M. Petersen (2009).

“15 W green light generation by single-pass second harmonic generation of a single-frequency tapered diode laser”.

In: *Optics Express* 17.8, S. 6532.

DOI: 10.1364/OE.17.006532

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 28).

Jundt, D. H., M. M. Fejer und R. L. Byer (1990).

“Optical properties of lithium-rich lithium niobate fabricated by vapor transport equilibration”.

In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* 26.1, S. 135–138.

DOI: 10.1109/3.44926

(In dieser Arbeit zitiert auf den Seiten 4, 28, 29, 63).

Kalvius, G. M., P. Kienle und K. Dransfeld (2005).

Physik I: Mechanik und Wärme.

5. Aufl.

München: Oldenbourg Wissenschaftsverlag.

DOI: 10.1524/9783486598742

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 18).

Keithley (2014).

Model 2000: 6 1/2-Digit Multimeter.

URL: <https://www.keithley.de/data?asset=359> (zuletzt aufgerufen am 27.11.2014)

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 18).

Kostritskii, S. M., O. G. Sevostyanov, M. Aillerie und P. Bourson (2008).

“Suppression of photorefractive damage with aid of steady-state temperature gradient in nominally pure LiNbO₃ crystals”.

In: *Journal of Applied Physics* 104.11, S. 114104.

DOI: 10.1063/1.3035948

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 37).

Lebigot, E. O. (2014).

Uncertainties: a Python package for calculations with uncertainties.

URL: <http://pythonhosted.org/uncertainties/> (zuletzt aufgerufen am 07.12.2014)

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 31).

Matthias, B. und J. Remeika (1949).

“Ferroelectricity in the Ilmenite Structure”.

In: *Physical Review* 76.12, S. 1886–1887.

DOI: 10.1103/PhysRev.76.1886.2

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 1).

Momma, K. und F. Izumi (2011).

“VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data”.

In: *Journal of Applied Crystallography* 44.6, S. 1272–1276.

DOI: 10.1107/S0021889811038970

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 3).

Nelson, D. F. (1974).

“Refractive indices of congruently melting lithium niobate”.

In: *Journal of Applied Physics* 45.8, S. 3688.

DOI: 10.1063/1.1663839

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 29).

Peithmann, K., A. Wiebrock, K. Buse und E. Krätzig (2000).

“Low-spatial-frequency refractive-index changes in iron-doped lithium niobate crystals upon illumination with a focused continuous-wave laser beam”.

In: *Journal of the Optical Society of America B* 17.4, S. 586.

DOI: 10.1364/JOSAB.17.000586

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 28).

Schwesyg, J. R. M.-L. (2011).

“Interaction of light with impurities in lithium niobate crystals”.

Diss. Bonn: Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn.

URN: urn:nbn:de:hbz:5N-26097

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 33).

Shen, H. Y., H. Xu, Z. D. Zeng, W. X. Lin, R. F. Wu und G. F. Xu (1992).

“Measurement of refractive indices and thermal refractive-index coefficients of LiNbO₃ crystal doped with 5 mol. % MgO”.

In: *Applied optics* 31.31, S. 6695–6697

(In dieser Arbeit zitiert auf den Seiten 28, 29, 63).

Smith, D. S., H. D. Riccius und R. P. Edwin (1976).

“Refractive indices of lithium niobate”.

In: *Optics Communications* 17.3, S. 332–335.

DOI: 10.1016/0030-4018(76)90273-X

(In dieser Arbeit zitiert auf den Seiten 29, 56, 63).

Wang, H., X. Hu und W. Zhou (1985).

“Optical Anomalies in LiNbO₃ Crystals”.

In: *Japanese Journal of Applied Physics* 24.S2, S. 275.

DOI: 10.7567/JJAPS.24S2.275

(In dieser Arbeit zitiert auf Seite 48).

Weis, R. S. und T. K. Gaylord (1985).

“Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure”.

In: *Applied Physics A Solids and Surfaces* 37.4, S. 191–203.

DOI: 10.1007/BF00614817

(In dieser Arbeit zitiert auf den Seiten 2, 8–10).

Wong, K. K. (2002).

Properties of lithium niobate.

Bd. 28.

EMIS datareviews series.

London: INSPEC/Institution of Electrical Engineers

(In dieser Arbeit zitiert auf den Seiten 2, 8, 13, 18, 28, 37, 47).

Dank

Die Messungen dieser Arbeit wurden am *Fraunhofer Institut für Physikalische Messtechnik IPM* in Freiburg in der Gruppe *Technologie optischer Materialien* unter der Leitung von Dr. Frank Kühnemann durchgeführt. Besonderer Dank gebührt außerdem meinem dortigen Betreuer Stephan Fieberg sowie der Gruppe *optische Systeme* am *Institut für Mikrosystemtechnik* der Universität Freiburg unter der Leitung von Dr. Ingo Breunig.

Nicht zuletzt bedanke ich mich bei Frau Prof. Dr. Petra Becker-Bohatý vom Lehrstuhl für Kristallographie der Universität zu Köln für die Vermessung des thermischen Ausdehnungskoeffizienten einer Lithiumniobatprobe.

Eigenständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, Levin Sebastian Streit, dass ich die hier vorliegende Bachelorarbeit selbständig verfasst, keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet und die Arbeit noch nicht in gleicher oder ähnlicher Weise noch auszugsweise an einer anderen Hochschule veröffentlicht habe.

Düsseldorf, den 12.12.2014

Anhang

thermischer Ausdehnungskoeffizient von *CLN*

Der thermische Ausdehnungskoeffizient von kongruentem, undotiertem Lithiumniobat wurde an der Probe *CLN* von der Gruppe um BOHATÝ am Lehrstuhl für Kristallographie in Köln neu vermessen. Neben dem in Kapitel 4, Gleichung (XII) angegebenen thermischen Ausdehnungskoeffizienten orthogonal zur z-Achse wurde auch derjenige entlang der z-Achse vermessen. Er soll hier angegeben werden, damit die Messung nicht verloren geht. Die Temperatur T wird in Kelvin angegeben:

$$\alpha_{CLN,\parallel z}(T) = (3,8 \pm 0,1) \cdot 10^{-6}/K - (7,0 \pm 0,9) \cdot 10^{-9}/K^2 \cdot (T - 300 K) \quad (\text{XVI})$$

Polynomfits durch die *Peaknummer über Peakposition-Graphen*

Die Periodenlänge $\Delta T_{2\pi}$ der in Abschnitt 5.6 und 5.7 vorgestellten Messungen ist mithilfe der Auswertung über Peakpositionen (vgl. Abschnitt 3.5.2) ermittelt worden. Gemäß Gleichung (XI) ist dazu die Funktion *Peaknummern über Peakpositionen* nötig. Sie soll hier für alle durchgeführten Gleichgewichtsmessungen angegeben werden, um die Berechnung des thermooptischen Koeffizienten nach Gleichung (IX), (X) und (XI) beispielsweise mit einem verbesserten thermischen Ausdehnungskoeffizienten nachträglich erneut durchführen zu können.

Zur Ermittlung der Funktion *Peaknummern über Peakpositionen* wurde ein Polynomfit 3. Grades mit folgender funktionalen Form durchgeführt:

$$\text{Peaknummer}(T) = p_0 + p_1 \cdot (T - \bar{T}) + p_2 \cdot (T - \bar{T})^2 + p_3 \cdot (T - \bar{T})^3 \quad (\text{XVII})$$

Hierbei sind p_0, p_1, p_2 und p_3 die aus der Anpassung an die Messdaten zu ermittelnden Parameter und \bar{T} der Mittelwert der Peakpositionen, der aus den Messdaten direkt berechnet werden kann und daher ohne Fehler angegeben wird. Die Peakposition T ist eine Temperatur und wird in $^{\circ}\text{C}$ angegeben.

Der Polynomfit wurde mithilfe des Python-Befehls `scipy.optimize.leastsq` durchgeführt. Er verwendet den Levenburg-Marquardt Algorithmus, der eine Methode zur Minimierung der Summe der Fehlerquadrate (*Methode der kleinsten Quadrate*) ist. Die Messdaten wurden dafür als fehlerfrei angenommen, der Fit also ohne Fehlergewichtung der einzelnen Messwerte durchgeführt. Der angegebene Fehler der Fitparameter ist daher ein rein statistischer Fehler.

(a) CLN, o-pol

λ in nm	\bar{T} in $^{\circ}C$	p_0	p_1 in K^{-1}	p_2 in K^{-2}	p_3 in K^{-3}
462	86,150	$110,2616 \pm 0,0027$	$1,56698 \pm 0,00011$	$(1,5956 \pm 0,0012) \cdot 10^{-3}$	$(-1,432 \pm 0,031) \cdot 10^{-6}$
470	86,614	$104,818 \pm 0,004$	$1,50471 \pm 0,00017$	$(1,5453 \pm 0,0019) \cdot 10^{-3}$	$(-1,85 \pm 0,05) \cdot 10^{-6}$
477	86,077	$102,414 \pm 0,006$	$1,45706 \pm 0,00025$	$(1,5033 \pm 0,0028) \cdot 10^{-3}$	$(-2,06 \pm 0,08) \cdot 10^{-6}$
481	86,156	$100,9080 \pm 0,0026$	$1,43463 \pm 0,00010$	$(1,5170 \pm 0,0012) \cdot 10^{-3}$	$(-8,58 \pm 0,31) \cdot 10^{-7}$
489	86,229	$97,5088 \pm 0,0022$	$1,39107 \pm 0,00009$	$(1,4680 \pm 0,0010) \cdot 10^{-3}$	$(-1,025 \pm 0,026) \cdot 10^{-6}$
498	86,434	$93,169 \pm 0,005$	$1,32819 \pm 0,00022$	$(1,3665 \pm 0,0025) \cdot 10^{-3}$	$(-1,83 \pm 0,07) \cdot 10^{-6}$
503	85,882	$91,249 \pm 0,007$	$1,30004 \pm 0,00028$	$(1,3188 \pm 0,0031) \cdot 10^{-3}$	$(-1,89 \pm 0,08) \cdot 10^{-6}$
516	86,100	$85,987 \pm 0,011$	$1,2258 \pm 0,0004$	$(1,190 \pm 0,005) \cdot 10^{-3}$	$(-1,44 \pm 0,13) \cdot 10^{-6}$
553	86,149	$75,742 \pm 0,005$	$1,09473 \pm 0,00021$	$(1,0818 \pm 0,0024) \cdot 10^{-3}$	$(-1,63 \pm 0,06) \cdot 10^{-6}$
565	86,087	$73,347 \pm 0,007$	$1,05049 \pm 0,00029$	$(1,0813 \pm 0,0033) \cdot 10^{-3}$	$(-1,08 \pm 0,09) \cdot 10^{-6}$
574	86,501	$71,7628 \pm 0,0023$	$1,02186 \pm 0,00009$	$(1,0356 \pm 0,0011) \cdot 10^{-3}$	$(-6,68 \pm 0,29) \cdot 10^{-7}$
581	85,645	$70,313 \pm 0,005$	$0,99688 \pm 0,00019$	$(9,983 \pm 0,021) \cdot 10^{-4}$	$(-6,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-7}$
591	86,148	$68,360 \pm 0,004$	$0,97032 \pm 0,00016$	$(9,713 \pm 0,018) \cdot 10^{-4}$	$(-8,7 \pm 0,5) \cdot 10^{-7}$
910	86,927	$36,704 \pm 0,004$	$0,52174 \pm 0,00018$	$(4,918 \pm 0,021) \cdot 10^{-4}$	$(-7,2 \pm 0,6) \cdot 10^{-7}$
940	86,896	$35,745 \pm 0,011$	$0,5027 \pm 0,0005$	$(4,59 \pm 0,05) \cdot 10^{-4}$	$(-6,6 \pm 1,4) \cdot 10^{-7}$
1031	87,378	$32,249 \pm 0,006$	$0,44963 \pm 0,00023$	$(4,492 \pm 0,026) \cdot 10^{-4}$	$(-6,6 \pm 0,7) \cdot 10^{-7}$
1130	86,989	$28,8705 \pm 0,0013$	$0,40650 \pm 0,00005$	$(3,914 \pm 0,006) \cdot 10^{-4}$	$(-4,66 \pm 0,17) \cdot 10^{-7}$

(b) CLN, e-pol

λ in nm	\bar{T} in $^{\circ}\text{C}$	p_0	p_1 in K^{-1}	p_2 in K^{-2}	p_3 in K^{-3}
462	86,742	$206,575 \pm 0,005$	$2,92059 \pm 0,00019$	$(3,3980 \pm 0,0021) \cdot 10^{-3}$	$(2,01 \pm 0,06) \cdot 10^{-6}$
462	86,134	$206,9665 \pm 0,0030$	$2,93492 \pm 0,00012$	$(3,4965 \pm 0,0013) \cdot 10^{-3}$	$(3,637 \pm 0,035) \cdot 10^{-6}$
470	86,227	$200,1648 \pm 0,0030$	$2,83328 \pm 0,00012$	$(3,3721 \pm 0,0013) \cdot 10^{-3}$	$(3,604 \pm 0,035) \cdot 10^{-6}$
477	86,575	$193,919 \pm 0,008$	$2,74750 \pm 0,00031$	$(3,2058 \pm 0,0034) \cdot 10^{-3}$	$(1,02 \pm 0,09) \cdot 10^{-6}$
481	85,257	$148,258 \pm 0,031$	$2,6652 \pm 0,0013$	$(3,336 \pm 0,014) \cdot 10^{-3}$	$(2 \pm 4) \cdot 10^{-7}$
489	86,735	$184,2914 \pm 0,0027$	$2,62884 \pm 0,00011$	$(3,0432 \pm 0,0012) \cdot 10^{-3}$	$(9,33 \pm 0,32) \cdot 10^{-7}$
489	86,330	$186,5514 \pm 0,0031$	$2,63856 \pm 0,00012$	$(3,1507 \pm 0,0014) \cdot 10^{-3}$	$(3,68 \pm 0,04) \cdot 10^{-6}$
498	86,624	$178,905 \pm 0,004$	$2,53209 \pm 0,00017$	$(2,9368 \pm 0,0019) \cdot 10^{-3}$	$(1,79 \pm 0,05) \cdot 10^{-6}$
503	86,716	$175,569 \pm 0,004$	$2,49141 \pm 0,00015$	$(2,8544 \pm 0,0017) \cdot 10^{-3}$	$(1,23 \pm 0,04) \cdot 10^{-6}$
516	86,745	$168,84 \pm 0,07$	$2,3883 \pm 0,0029$	$(2,697 \pm 0,032) \cdot 10^{-3}$	$(2,1 \pm 0,9) \cdot 10^{-6}$
516	86,268	$167,144 \pm 0,014$	$2,3658 \pm 0,0005$	$(2,832 \pm 0,006) \cdot 10^{-3}$	$(4,42 \pm 0,16) \cdot 10^{-6}$
553	87,359	$146,600 \pm 0,005$	$2,13523 \pm 0,00018$	$(2,4152 \pm 0,0021) \cdot 10^{-3}$	$(3,09 \pm 0,05) \cdot 10^{-6}$
565	86,147	$140,670 \pm 0,004$	$2,05986 \pm 0,00017$	$(2,3853 \pm 0,0019) \cdot 10^{-3}$	$(1,81 \pm 0,05) \cdot 10^{-6}$
574	86,175	$141,5452 \pm 0,0035$	$2,01230 \pm 0,00014$	$(2,3236 \pm 0,0016) \cdot 10^{-3}$	$(2,34 \pm 0,04) \cdot 10^{-6}$
578	86,277	$138,813 \pm 0,007$	$1,99752 \pm 0,00029$	$(2,3775 \pm 0,0033) \cdot 10^{-3}$	$(2,45 \pm 0,09) \cdot 10^{-6}$
581	86,175	$139,0683 \pm 0,0025$	$1,97330 \pm 0,00010$	$(2,2915 \pm 0,0011) \cdot 10^{-3}$	$(2,200 \pm 0,029) \cdot 10^{-6}$
591	78,771	$121,835 \pm 0,013$	$1,8877 \pm 0,0006$	$(2,237 \pm 0,007) \cdot 10^{-3}$	$(3,60 \pm 0,20) \cdot 10^{-6}$
910	88,223	$77,7379 \pm 0,0026$	$1,08265 \pm 0,00010$	$(1,2962 \pm 0,0011) \cdot 10^{-3}$	$(1,447 \pm 0,030) \cdot 10^{-6}$
940	77,619	$63,4397 \pm 0,0029$	$1,01660 \pm 0,00013$	$(1,2058 \pm 0,0017) \cdot 10^{-3}$	$(1,60 \pm 0,05) \cdot 10^{-6}$
986	88,049	$69,947 \pm 0,006$	$0,98795 \pm 0,00023$	$(1,1325 \pm 0,0025) \cdot 10^{-3}$	$(1,51 \pm 0,07) \cdot 10^{-6}$
1031	88,651	$67,015 \pm 0,004$	$0,93829 \pm 0,00017$	$(1,1563 \pm 0,0019) \cdot 10^{-3}$	$(1,39 \pm 0,05) \cdot 10^{-6}$
1130	85,238	$59,876 \pm 0,010$	$0,8546 \pm 0,0004$	$(9,50 \pm 0,04) \cdot 10^{-4}$	$(-4,9 \pm 1,2) \cdot 10^{-7}$

(c) Fe:CLN, o-pol

λ in nm	\bar{T} in $^{\circ}C$	p_0	p_1 in K^{-1}	p_2 in K^{-2}	p_3 in K^{-3}
489	85,266	$107,076 \pm 0,011$	$1,5114 \pm 0,0004$	$(1,425 \pm 0,005) \cdot 10^{-3}$	$(9,3 \pm 1,3) \cdot 10^{-7}$
1031	85,847	$34,2562 \pm 0,0010$	$0,48470 \pm 0,00004$	$(4,595 \pm 0,005) \cdot 10^{-4}$	$(-5,31 \pm 0,13) \cdot 10^{-7}$
1130	85,702	$30,879 \pm 0,006$	$0,43323 \pm 0,00024$	$(3,838 \pm 0,027) \cdot 10^{-4}$	$(-3,0 \pm 0,8) \cdot 10^{-7}$

(d) Fe:CLN, e-pol

λ in nm	\bar{T} in $^{\circ}C$	p_0	p_1 in K^{-1}	p_2 in K^{-2}	p_3 in K^{-3}
489	85,828	$203,291 \pm 0,004$	$2,87814 \pm 0,00015$	$(3,2917 \pm 0,0016) \cdot 10^{-3}$	$(2,22 \pm 0,04) \cdot 10^{-6}$
1031	86,084	$71,584 \pm 0,004$	$1,01914 \pm 0,00016$	$(1,1509 \pm 0,0019) \cdot 10^{-3}$	$(7,7 \pm 0,5) \cdot 10^{-7}$
1130	86,474	$64,124 \pm 0,007$	$0,91651 \pm 0,00030$	$(1,0243 \pm 0,0034) \cdot 10^{-3}$	$(1,00 \pm 0,09) \cdot 10^{-6}$

(e) SLN, o-pol

λ in nm	\bar{T} in $^{\circ}C$	p_0	p_1 in K^{-1}	p_2 in K^{-2}	p_3 in K^{-3}
489	86,627	$282,8544 \pm 0,0024$	$3,99688 \pm 0,00010$	$(3,7794 \pm 0,0011) \cdot 10^{-3}$	$(-3,546 \pm 0,028) \cdot 10^{-6}$
1031	86,481	$91,1674 \pm 0,0030$	$1,28806 \pm 0,00012$	$(1,0686 \pm 0,0013) \cdot 10^{-3}$	$(-1,80 \pm 0,04) \cdot 10^{-6}$

(f) SLN, e-pol

λ in nm	\bar{T} in $^{\circ}\text{C}$	p_0	p_1 in K^{-1}	p_2 in K^{-2}	p_3 in K^{-3}
489	86,179	$526,846 \pm 0,008$	$7,64413 \pm 0,00032$	$(7,868 \pm 0,004) \cdot 10^{-3}$	$(2,49 \pm 0,09) \cdot 10^{-6}$
1031	86,265	$192,8547 \pm 0,0032$	$2,72118 \pm 0,00013$	$(2,6699 \pm 0,0014) \cdot 10^{-3}$	$(1,7 \pm 0,4) \cdot 10^{-7}$

(g) MgO:CLN, o-pol

λ in nm	\bar{T} in $^{\circ}\text{C}$	p_0	p_1 in K^{-1}	p_2 in K^{-2}	p_3 in K^{-3}
489	87,030	$307,9748 \pm 0,0029$	$4,34630 \pm 0,00011$	$(4,5338 \pm 0,0012) \cdot 10^{-3}$	$(-2,517 \pm 0,032) \cdot 10^{-6}$
1031	87,110	$99,6013 \pm 0,0020$	$1,39969 \pm 0,00008$	$(1,3789 \pm 0,0009) \cdot 10^{-3}$	$(-7,11 \pm 0,23) \cdot 10^{-7}$
1130	87,008	$89,3982 \pm 0,0022$	$1,25396 \pm 0,00009$	$(1,2098 \pm 0,0010) \cdot 10^{-3}$	$(-6,17 \pm 0,26) \cdot 10^{-7}$

(h) MgO:CLN, e-pol

λ in nm	\bar{T} in $^{\circ}\text{C}$	p_0	p_1 in K^{-1}	p_2 in K^{-2}	p_3 in K^{-3}
489	87,195	$584,096 \pm 0,008$	$8,26071 \pm 0,00029$	$(8,9130 \pm 0,0032) \cdot 10^{-3}$	$(2,14 \pm 0,08) \cdot 10^{-6}$
1031	87,114	$207,9820 \pm 0,0032$	$2,92571 \pm 0,00012$	$(3,1483 \pm 0,0014) \cdot 10^{-3}$	$(1,86 \pm 0,04) \cdot 10^{-6}$
1130	87,175	$187,5955 \pm 0,0030$	$2,63561 \pm 0,00012$	$(2,8001 \pm 0,0013) \cdot 10^{-3}$	$(1,838 \pm 0,034) \cdot 10^{-6}$

Tabelle 6: Koeffizienten des Polynomfits an den *Peaknummern über Peakpositionen*-Graph nach Gleichung (XVII)